Friedemann Streich

NUMERISCHE MODELLIERUNG UND SIMULATION VON BLEIFREIEN RELAXOR-FERROELEKTRIKUM-KOMPOSITEN

SCHRIFTENREIHE DES INSTITUTS
FÜR ANGEWANDTE MATERIALIEN

BAND 112

KIT Scientific Publishing

Friedemann Streich

Numerische Modellierung und Simulation von bleifreien Relaxor-Ferroelektrikum-Kompositen

Schriftenreihe
des Instituts für Angewandte Materialien
Band 112

Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
Institut für Angewandte Materialien (IAM)

Eine Übersicht aller bisher in dieser Schriftenreihe erschienenen Bände finden Sie am Ende des Buches.

Numerische Modellierung und Simulation von bleifreien Relaxor-Ferroelektrikum-Kompositen

von
Friedemann Streich

KIT Scientific Publishing

Karlsruher Institut für Technologie
Institut für Angewandte Materialien

Numerische Modellierung und Simulation von
bleifreien Relaxor-Ferroelektrikum-Kompositen

Zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktor der Ingenieurwissenschaften von der KIT-Fakultät für Maschinenbau des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT) genehmigte Dissertation

von Friedemann Streich, M.Sc.

Tag der mündlichen Prüfung: 29. September 2022
Referent: Prof. Dr.-Ing. Marc Kamlah
Korreferent: Prof. Dr. Manfred Kohl

Impressum

KIT Scientific Publishing

Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
KIT Scientific Publishing
Straße am Forum 2
D-76131 Karlsruhe

www.ksp.kit.edu

Print on Demand 2023 – Gedruckt auf FSC-zertifiziertem Papier

ISSN 2192-9963
ISBN 978-3-7315-1259-2
DOI 10.5445/KSP/1000152861

Numerische Modellierung und Simulation von bleifreien Relaxor-Ferroelektrikum-Kompositen

Zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Ingenieurwissenschaften

der KIT-Fakultät für Maschinenbau
Karlsruher Institut für Technologie (KIT)

genehmigte

Dissertation

von

M.Sc. Friedemann Streich

Tag der mündlichen Prüfung:	29. September 2022
Referent:	Prof. Dr.-Ing. Marc Kamlah
Korreferent:	Prof. Dr. Manfred Kohl

Kurzfassung

Die vorliegende Dissertation untersucht Zweilagenkomposite zur Anwendung als Sensor und Aktuator, bestehend aus bleifreien, Natrium-Bismut-Titanat (NBT) basierten Relaxor-Ferroelektrika, mittels Experimenten und numerischer Simulation mit der Finite-Elemente-Methode.

Die Herstellung der verwendeten Zweilagenkomposite, bestehend aus dem nicht-ergodischen Relaxor $0.94Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$-$0.06BaTiO_3$ und dem ergodischen Relaxor $0.90Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$-$0.06BaTiO_3$-$0.04K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$, wird ausführlich dokumentiert. Das elektromechanische Verhalten der beiden verwendeten Materialien sowie der polarisation- (PC) bzw. polarisations- und dehnungsgekoppelten (PSC) Komposite wird mit elektrischer und mechanischer Belastung und variierenden Volumenzusammensetzungen experimentell analysiert.

Im Vergleich zu den reinen Materialien weisen die Komposite verbesserte elektromechanische Eigenschaften auf. Für die PSC-gekoppelten Komposite wird gegenüber den PC-gekoppelten Kompositen eine Überhöhung des piezoelektrischen Großsignalkoeffizients d_{33}^* in Abhängigkeit der Volumenzusammensetzung beobachtet. Experimentell kann die Ursache der Überhöhung nicht ergründet werden, da die inneren Zustände der Komposite messtechnisch nicht erfassbar sind.

Um den beobachteten Effekt zu verstehen und zu optimieren, werden numerische Simulationen mit Hilfe des kommerziellen Finite-Elemente-Programms COMSOL Multiphysics™ durchgeführt. Hierfür wird ein dreidimensionales,

vollständig elektromechanisch gekoppeltes Materialmodell entwickelt, welches das unterschiedliche Verhalten der beiden verwendeten Materialien wiedergeben kann. Die Besonderheiten dieses Modells sind die Berücksichtigung der eingeschnürten Hysteresen und des internen Ordnungsübergangs, sowie die nicht-deviatorischen polarisationsinduzierten Verzerrungen. Die Zeitintegration der geschichtsabhängigen inneren Variablen wird im Rahmen der Finite-Elemente-Methode mit einem Prädiktor-Korrektor-Verfahren durchgeführt.

Simulationen der verwendeten Materialien und der PC- und PSC-gekoppelten Komposite werden den Experimenten gegenübergestellt. Weiterhin wird der Einfluss der Volumenzusammensetzung sowie der elektrischen Leitfähigkeit auf das globale Verhalten der Komposite untersucht.

Mit dem entwickelten Simulationswerkzeug wird der experimentell beobachtete Überhöhungseffekt des piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten d_{33}^* bestätigt, die Ursache ergründet und anhand einer umfangreichen Parameterstudie optimiert. In dieser Studie werden Materialparameter, die elektromechanische Kopplungsart und die elektrische Belastung variiert. Abschließend wird eine Empfehlung zur gezielten Weiterentwicklung des untersuchten bleifreien, NBT-basierten Werkstoffsystems gegeben.

Abstract

The present dissertation examines bilayer composites for the use in sensor and actuator applications, consisting of lead-free, Sodium-Bismuth-Titanate (NBT) based relaxor ferroelectrics, by means of experiments and numerical finite-element-method simulations.

Fabrication and preparation of the bilayer composites, consisting of the non-ergodic relaxor material $0.94Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$-$0.06BaTiO_3$ and the ergodic relaxor material $0.90Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$-$0.06BaTiO_3$-$0.04K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$, is documented in detail. The electromechanical behavior of the used materials as well as the polarization coupled (PC) respectively the polarization and strain coupled (PSC) composites is analyzed experimentally with electrical and mechanical loadings and varying volume fractions.

Compared to the pure materials, the composites exhibits improved electromechanical properties. In contrast to the PC coupled composites, the PSC coupled composites reveal an enhancement of the large signal piezoelectric coefficient d_{33}^* depending on the volume fractions. The cause of this phenomenon cannot be investigated experimentally, as the internal states of the composits cannot be explored by measurements.

In order to understand and to optimize the observed effect, numerical simulations are carried out with the help of the commercial finite-element program COMSOL Multiphysics™. A fully electromechanically coupled, three dimensional phenomenological constitutive model, which can represent the different material behavior of the used relaxor ferroelectric materials, is being developed for the use in the finite-element-method solution procedure. This

constitutive model accounts for the observed pinched hysteretic response, the internal order transition as well as non-deviatoric polarization induced strain. Time integration of the history dependent internal variables is done with a predictor-corrector integration scheme.

Simulations of the used materials and the PC and PSC coupled composites are compared to the experiments. Furthermore, the influence of the volume fractions as well as the electrical conductivity on the global behavior of the composites is investigated.

With the developed simulation tool, the experimental observed enhancement of the large signal piezoelectric coefficient d_{33}^{*} is confirmed, the cause examined and, with the help of a parameter study, optimized. In this study, material parameters, electromechanical coupling and the electric load are varied. Finally, a recommendation for the further developement of the used lead-free, NBT based relaxor ferroelectric material system is given.

Danksagung

Die vorliegende Dissertation entstand aus meiner Forschungstätigkeit in der Forschungsgruppe von Prof. Dr.-Ing. Marc Kamlah und in Kooperation mit Prof. Dr. Kyle G. Webber (FAU Erlangen-Nürnberg) und Dr. Alexander Martin (Nagoya Institute of Technology, Japan). Mein besonderer Dank gilt meinem Doktorvater Prof. Kamlah für die Übernahme des Hauptreferats. Er hat mit seinem nahezu unendlichen Wissen allzeit hilfsbereit, geduldig und präzise zur Fertigstellung dieser Arbeit beigetragen. Bei meinen Projektpartnern möchte ich mich für den fachlichen Austausch und für die zur Verfügungstellung der Versuchsdaten bedanken. Ebenso möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. Manfred Kohl für die Übernahme des Korreferats bedanken.

Bei den Mitarbeitenden des IAM-MMI möchte ich mich für unzählige fruchtbare Diskussionen, konstruktive Kritik, Aufmunterung und Unterstützung zwischen Tür und Angel, an der Kaffeemaschine oder während der gemeinsamen Mittagspause bedanken.

Bei Sophie Günther und meiner Frau Anne Streich bedanke ich mich herzlich für die kritische Durchsicht zur sprachlichen Verbesserung dieser Arbeit. Unendlich dankbar bin ich meiner Frau und meinen Kindern für die Unterstützung während der langen Zeit der Promotion.

Die Förderung des Projektes durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) KA 1019/14-1 und WE 4972/5-1 wird dankbar gewürdigt.

Stutensee, im Januar 2022 *Friedemann Streich*

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung

Sensoren und Aktuatoren aus piezoelektrischen Materialien ermöglichen die Erfassung und die Generierung von mechanischen Größen wie z.B. Deformation, Schwingung und Beschleunigung in technischen Anwendungen [1–3]. Dies ist durch den direkten bzw. den inversen piezoelektrischen Effekt möglich [4, 5]. In diesen Materialien besteht eine Kopplung zwischen den elektrischen und den mechanischen Eigenschaften. Da der Effekt umkehrbar ist, kann ein piezoelektrisches Bauteil sowohl als Sensor als auch als Aktuator betrieben werden. In piezoelektrischen Sensoren erzeugen mechanische Deformationen elektrische Potentiale, die messtechnisch erfasst werden können. Diese werden z.B. bei der Messung von mechanischen Kennwerten wie Druck, Kraft und Beschleunigung oder zur Energiegewinnung (engl. *energy harvesting*) [6] verwendet. Im piezoelektrischen Aktuator erzeugen aufgebrachte elektrische Felder mechanische Deformationen. Diese werden z.B. in der aktuellen Generation der Kraftstoffeinspritzsysteme von Verbrennungsmotoren, in der hochpräzisen Nanopositionierung, in der Mikrowellen- und Ultraschalltechnik oder in mechatronischen Bauteilen zur Generierung von Vibrationen verwendet. Auf ein Anwendungsbeispiel soll hier genauer eingegangen werden: Das Rüttelsieb des *Chemistry & Mineralogy X-Ray Diffraction Instrument* (CheMin) an Bord des Mars Rover *Curiosity* der *National Aeronautics and Space Administration* (NASA) wird durch geschichtete Multilagen-Aktuatoren gerüttelt. [7]. CheMin führt chemische und mineralogische Untersuchungen an pulverisiertem Marsgestein mittels Röntgenbeugung (engl. *X-ray diffraction*, XRD) durch. Um homogene Partikelgrößen oder nach der Dichte getrennte Proben zu erhalten, wird das Gesteinspulver durch das Rüttelsieb bei unterschiedlichen Amplituden und Frequenzen präpariert bzw. selektiert.

Die verwendeten piezoelektrischen Aktuatoren müssen dabei über viele Jahre den herausfordernden Umgebungsbedingungen des Weltraums und des Mars stand halten. Um für diese Mission hinsichtlich der Ausfallwahrscheinlichkeit durch die NASA zugelassen zu werden, mussten die verwendeten Aktuatoren in Experimenten 10^{11} Belastungszyklen ohne Rückgang der Leistungsfähigkeit absolvieren. Auch im nachfolgenden Mars Rover *Perseverance* spielen piezoelektrische Bauteile eine wichtige Rolle.

Die Vorteile von piezoelektrischen Sensoren und Aktuatoren bestehen im einfachen Aufbau und dem wartungsfreien Betrieb [8]. Zudem weisen diese Bauteile eine sehr hohe Zuverlässigkeit und geringe Reaktionszeit auf. Dies ermöglicht eine sehr hohe Präzision der gemessenen bzw. generierten Deformation [9], die das breite Anwendungsspektrum dieser Technologie ermöglichen. Mit voranschreitender Digitalisierung werden piezoelektrische Sensoren und Aktuatoren weiter an Einfluss gewinnen.

Der heutige Markt der piezoelektrischen Bauteile wird durch ferroelektrische Blei-Zirkonat-Titanat- (PZT) basierte Materialien mit exzellenten und abstimmbaren elektromechanischen Eigenschaften dominiert [5, 10–12]. Ferroelektrische Materialien besitzen eine polykristalline Mikrostruktur. Nach der Herstellung (Sinterung) sind auf makroskopischer Ebene keine piezoelektrischen Eigenschaften vorhanden. Erst nach dem initialen Polungsprozess, der Ausrichtung der spontanen Polarisation im Polykristall durch Aufbringung eines hohen elektrischen Feldes, entstehen makroskopisch nutzbare piezoelektrische Eigenschaften [5, 13]. PZT beinhaltet jedoch hohe Anteile an Blei, die bei der Herstellung, der unsachgemäßen Verwendung und der Entsorgung zu gesundheitlichen Beeinträchtigungen und zu erheblichen Umweltbelastungen führen. Die Europäische Kommission verbot in der Richtlinie 2002/95/EG vom 27. Januar 2003 [14] die Verwendung von Blei und weiteren Schwermetallen in Elektro- und Elektronikgeräten zum Schutz der Lebewesen und der Umwelt nach dem 01. Juli 2006. In dieser Verordnung ist u.a. die Verwendung von „Blei in keramischen Elektronikbauteilen (z. B. piezoelektronische Bauteile)“ ausgenommen. Die Ausnahmen in dieser Verordnung sollen alle vier

Jahre überprüft und ggf. dem technischen Fortschritt angepasst werden. Im Beschluss zur *Änderung des Anhangs der Richtlinie 2002/95/EG vom 8. September 2011* [15] steht geschrieben:

> „Die Substitution von Blei in PZT-basierten dielektrischen Keramikwerkstoffen für Kondensatoren, die Teil integrierter Schaltkreise oder diskreter Halbleiter sind, ist technisch noch nicht praktikabel. Die Verwendung von Blei in solchen Werkstoffen sollte daher von dem Verbot ausgenommen werden.“

In der erneut überarbeiteten *Richtlinie 2011/65/EU vom 8. Juni 2011,* [16] Anhang III werden als Ausnahme weiterhin

> „Blei enthaltende elektrische und elektronische Bauteile in Glas oder Keramikwerkstoffen ... z.B. piezoelektronische Geräte, oder in einer Glas- oder Keramikmatrixverbindung“

aufgeführt. Diese Ausnahmen verdeutlichen einerseits die gesellschaftliche Relevanz der piezoelektrischen Werkstoffe und insbesondere von PZT, andererseits das Dilemma der Abwägung zwischen verschiedenen Schädigungspotentialen. Ein Beispiel hierfür ist die Verwendung von PZT in der aktuellen Generation der piezoelektrisch gesteuerten Kraftstoffeinspritzsysteme der Dieselmotoren, die im Vergleich zu mechanischen Einspritzsystemen deutliche Einsparungen von Treibstoffen ermöglichen und daher zur Verringerung des Schadstoffausstoßes beitragen[17, 18]. Bis heute ist die Substitution bleihaltiger piezokeramischer Werkstoffe mangels technologisch ausgereifter Alternativen mit vergleichbaren elektromechanischen Eigenschaften nicht durchführbar. In anderen Anwendungen wie z.B. Kraftstoff, Trinkwasserleitungen, Farben und Lacke, Munition (Schrotkugeln, Mantelgeschosse), Gewichten zum Wuchten von Fahrzeugreifen, Ballastgürtel- und Westen aus dem Bereich des Sport- und Berufstauchens oder der Gewichte beim Fischen und Angeln wurde die Verwendung von Blei durch die Europäische Kommission ebenfalls verboten oder zumindest stark eingeschränkt. Blei wird jedoch in industriellen bzw. technischen Anwendungen wie z.B. der Abschirmung

von Radioaktivität oder als Legierungsbestandteil auch weiterhin unabdingbar sein. Da langfristig nicht mehr mit einer Ausnahmeregelung zur Verwendung von PZT zu rechnen ist, besteht ein hohes gesellschaftliches Interesse an der Entwicklung von ungiftigen Alternativen zu PZT mit gleichwertigen oder besseren Eigenschaften.

In den beiden zurückliegenden Dekaden wurden einige bleifreie piezoelektrische Materialsysteme entwickelt, die vielversprechende elektromechanische Eigenschaften aufweisen [19–21]. Darunter sind binäre [22, 23] und ternäre [20, 24] feste Lösungen (engl. *solid solutions*), die auf Natrium-Bismuth-Titanat- (NBT) basieren. Diese sind wegen ihres hohen Dehnungsvermögens für den Einsatz in Aktuatoren bereits umfangreich erforscht [20, 25, 26]. Die Ursache des hohen Dehnungsvermögens dieser Materialien kann dem chemisch ungeordneten Relaxorzustand zugeordnet werden. Durch Belastung mit elektrischen Feldern kann eine ferroelektrische Fernordnung (engl. *long range ferroelectric order*) induziert werden, die einen sprunghaften Anstieg von Polarisation und Dehnung bewirkt. Diese führt jedoch zu Problemen, welche vor dem Einsatz der Relaxormaterialien in technischen Anwendungen untersucht werden müssen. Erstens sind zum Erreichen der hohen Dehnungen sehr hohe elektrische Felder notwendig. Zweitens ist ein signifikantes, stark nichtlineares Hystereseverhalten vorhanden, das einen hohen Energieverlust aufzeigt und möglicherweise zu einer Überhitzung und damit zum Verlust der piezoelektrischen Eigenschaften führen kann. Relaxor-Ferroelektrium-Komposite stellen eine effektive Möglichkeit dar, die genannten Probleme zu umgehen. In [27–29] sind entsprechende Lösungen aufgezeigt. Dabei werden keramische Komposite vom Typ 0-3 aus einem nichtergodischen Relaxor bzw. einem Ferroelektrikum (Keim) und einem ergodischen Relaxor (Matrix) verwendet. Die Benennung der Komposite beschreibt die Verbindungmöglichkeiten zwischen Keim und Matrix und geht auf *R.E. Newnham* [30] zurück. In [31–33] werden für bleifreie, geschichtete Komposite vom Typ 2-2 Verbesserungen der Dehnungsantworten gegenüber den einzelnen Komponenten dokumentiert und die zugrunde liegenden Mechanismen untersucht. Unterschiedliche Polarisations- und Dehnungsantworten der Komponenten verursachen Polarisations-

und Dehnungskopplungseffekte, welche die Dehnung des Kompositsystems steigern und gleichzeitig die hierfür benötigten elektrischen Felder reduzieren können. Diese experimentelle Arbeiten lassen wichtige Fragstellungen offen, die in der vorliegenden Arbeit anhand numerischer Simulationen untersucht werden: Wie ist die Verteilung der Feldgrößen im Inneren der Komposite? Wie werden die Feldgrößen und das Dehnungsverhalten der Komposite durch die Leitfähigkeit beeinflusst? Unter welchen Bedingungen kommt es, gegenüber den einzelnen Komponenten, zu einer Verbesserung der Dehnungsantwort der Komposite? Was ist die Ursache für diese Verbesserung? Wie kann die Dehnungsantwort der Komposite weiter verbessert werden?

Hierzu werden Experimente und Simulationen anhand zweier neu entwickelten, NBT-basierten Relaxormaterialien sowie an daraus zusammengesetzten Zweilagenkompositen untersucht. Mittels der Finite-Elemente-Methode (FEM) sind virtuell Einblicke in innere Feldgrößen möglich, die messtechnisch nicht erfassbar sind. Durch die Simulationen werden die Einflüsse einzelner elektromechanischer Größen des Materialsystems, der Polarisations- und Dehnungskopplung und der Höhe der Belastung untersucht. Weiterhin wird die elektromechanische Kopplung der Zweilagenkomposite mit Hilfe einer Parameterstudie optimiert. Die untersuchten Relaxormaterialien weisen gegenüber ferroelektrischen Materialien veränderte Hysteresen auf. Nach bestem Wissen existiert kein Materialmodell, das das Verhalten der verwendeten Materialien in Form eines vollständig elektromechanisch gekoppelten, dreidimensionalen Modells adäquat beschreiben kann. Ein solches Modell ist jedoch zwingend zur Simulation der Komposite nötig und wird daher im Rahmen dieser Arbeit entwickelt.

Durch die Beantwortung der genannten Fragestellungen sollen die folgenden Ziele erreicht werden: Erlangen eines Verständisses für die Zusammenhänge zwischen den inneren Feldgrößen und der Polarisations- und Dehnungsantworten der unterschiedlich gekoppelten Zweilagenkomposite. Der experimentell beobachteten Effekte zur Verbesserungen der Komposite gegenüber den einzelnen Komponenten soll durch Simulationen bestätigt und dessen

Ursachen ergründet werden. Erarbeitung von Vorschlägen zur gezielten Verbesserung und Weiterentwicklung des bleifreien, NBT-basierten Materialsystems.

Aus den genannten Zielen ergibt sich der folgende Aufbau der vorliegenden Arbeit: Nach dieser Einleitung werden die theoretischen Grundlagen der Piezo- und Ferroelektrizität und der numerischen Modellierung in Kap. 2 vorgestellt. In Kap. 3 werden die Herstellung von zwei bleifreien, NBT-basierten Materialien und von daraus zusammengesetzten Zweilagenkompositen sowie deren experimentelle Untersuchung dokumentiert. Da kein existierendes Materialmodell die untersuchten bleifreien Materialien adäquat beschreiben kann, wird in Kap. 4 ein passende Materialmodell entwickelt und die Implementierung in das kommerzielle FEM-Programm COMSOL Multiphysics™ vorgestellt. In Kap. 5 folgt die Validierung der Implementierung des Materialmodells und dessen Anpassung an die beiden Materialien anhand grundlegender FEM-Simulationen. Weiterhin werden in Kap. 6 FEM-Simulationen der Zweilagenkomposite berichtet, deren Ergebnisse mit den Simulationen der einzelnen Materialien verglichen und den experimentellen Ergebnissen gegenübergestellt werden. Zur Steigerung der piezoelektrischen Kopplungseingenschaften wird der Einfluss einzelner Materialparameter, der zusätzlichen Dehnungskopplung, der elektrischen Belastung und der Volumenanteile auf den Zweilagenkomposit in Kap. 7 im Rahmen einer umfangreichen Parameterstudie untersucht. Abschließend werden die gewonnenen Ergebnisse noch einmal in Kap. 8 zusammengefasst.

2 Grundlagen der Piezo- und Ferroelektrizität

Im Jahre 1824 wurde von *Sir David Brewster* der pyroelektrische Effekt an Seignettesalz beschrieben, bei dem eine Änderung der Temperatur zu elektrischen Ladungen an der Oberfläche des Kristalls führt [34]. Bedingt durch die polare Kristallstruktur verhalten sich pyroelektrische Materialien auch immer piezoelektrisch. Der piezoelektrische Effekt wurde jedoch erst im Jahre 1880 von den Brüdern *Jacques und Pierre Curie* bei Versuchen mit Turmalin, Topas, Quarz und weiteren Mineralien entdeckt. Dabei wurde ein proportionaler Zusammenhang zwischen der aufgebrachten Deformation und der auftretenden elektrischen Oberflächenladung erkannt [4]. Die Ursache hierfür wurde analog zum pyroelektrischen Effekt in der unsymmetrischen Konfiguration des Kristallgitters vermutet. Im Jahre 1912 entwickelte *Peter Debye* eine Hypothese zur Erklärung der ihm bekannten piezoelektrischen Phänomene: Bestimmte Klassen an Molekülen besitzen ein permanentes Dipolmoment, analog zum magnetischen Moment in den Atomen von paramagnetischen Materialien. Darauf aufbauend wurden bedeutende Analogien zwischen der Piezoelektrizität und dem Ferromagnetismus abgeleitet und die Ferroelektrizität vorhergesagt. Als erstes ferroelektrisches Material wurde Seignettesalz im Jahre 1920 von *Joseph Valasek* erkannt und daran die erste ferroelektrische Hysterese beobachtet [35]. Letztlich gab die Ausrichtbarkeit der Polarisation, angelehnt an den Ausrichtungsprozess des Ferromagnetismus, der Ferroelektrizität ihren Namen, der erstmals 1912 in der „*Habilitations-Schrift*" von *Erwin Schrödinger* verwendet wurde. Seit dem zweiten Weltkrieg ist der piezoelektrische Effekt nicht nur in den genannten monokristallinen Materialien,

sondern auch in polykristallinen Keramiken wie z.B. $BaTiO_3$ (Barium-Titanat, BT) und $Pb[Zr_xTi_{1-x}]O_3$ (Blei-Zirkonat-Titanat, PZT) nachgewiesen [36–38]. Weiterhin besitzen viele biologische Materialien bzw. Gewebe wie z.B. Holz, Knochen, Haut, Dentin und Biopolymere piezoelektrische Eigenschaften [39–41]. Durch die Entwicklung und Optimierung der BT- und PZT-basierten Keramiken konnten sich piezoelektrische Sensoren und Aktuatoren in einem sehr breiten Anwendungsspektrum etablieren und sind heutzutage in elektronischen Geräten allgegenwärtig.

Nach diesem historischen Exkurs werden nun die zur numerischen Simulation der piezo- bzw. ferroelektrischen Materialien notwendigen materialwissenschaflichen und physikalischen Grundlagen zusammengetragen. Der Fokus dieser Arbeit liegt auf der Bereitstellung eines vollständig elektromechanisch gekoppelten Berechnungswekzeugs. Daher kann und will die folgende Zusammenstellung, besonders aus Sicht der Materialwissenschaft bzw. der Festkörperphysik, keinen Anspruch auf Vollständigkeit erheben.

2.1 Piezo- und Ferroelektrizität

Die elektromechanischen Koppelphänomene der Piezo- und Ferroelektrizität sind z.B. in [5, 42–46] umfangreich dokumentiert und werden nun anhand des Ferroelektrikums BT ausführlich vorgestellt. Bei BT handelt es sich um einen Ionenkristall, der eine Perowskit-Struktur besitzt. Die durch Ionenbindung zusammengehaltene, sich periodisch wiederholenden Einheitszelle des Kristallgitters ist in Abb. 2.1 dargegstellt. Aufgrund einer Temperaturabhängigkeit, verursacht durch die Perowskit-Struktur, weist BT verschiedene Konfigurationen auf. Überhalb der *Curie-Temperatur* T^c, die für dieses Material etwa 120 °C beträgt, liegt ein kubisches Kristallgitter mit der Gitterkonstanten a_0 vor. Unterhalb von T^c liegt ein tetragonal verzerrtes Kristallgitter mit den Gitterkonstanten $c > a$ mit $(c - a_0)/a_0 \approx 0.5 \ldots 1.0\%$ vor, bei dem die Positionen

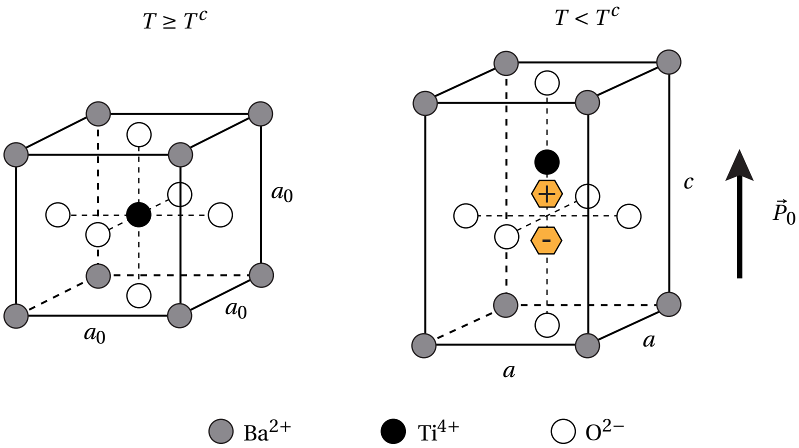


Abbildung 2.1: Kubische und tetragonale Einheitszelle von BT ober- und unterhalb der Curie-Temperatur.

der positiven und der negativen Ladungsschwerpunkte nicht mehr übereinstimmen. Deren Lage bestimmt jedoch maßgebend die elektromechanischen Eigenschaften des Materials. Können diese durch Anlegen eines elektrischen Feldes gegeneinander verschoben werden, so spricht man von einem polarisierbaren Material mit der Polarisation $\vec{P}$. Liegt dieser Zustand auch ohne eine elektrische Belastung vor, so wird dies als *spontane Polarisation* $\vec{P}_0$ bezeichnet. Der Polarisationsvektor $\vec{P}$ wird proportional zu den Positionen der positiven und negativen Ladungsschwerpunkte definiert.

Ferroelektrische Materialien verhalten sich auf der mikroskopischen Skala immer piezoelektrisch. Die Position der Ladungsschwerpunkte und damit die Ausrichtung der spontanen Polarisation können jedoch im Gegensatz zu rein piezoelektrischen Materialien durch elektrische Felder oder mechanische Spannungen beeinflusst werden. Somit wird hier zunächst auf das piezoelektrische Materialverhalten eingegangen. Der einfachste Zugang zur Piezoelektrizität erfolgt über den *inversen* piezoelektrischen Effekt. Wird das mechanisch unbelastete, piezoelektrische Material durch ein elektrisches Feld in

bzw. entgegen der Richtung der spontanen Polarisation belastet, so ist eine proportionale Dehnung zu beobachten. Das elektrische Feld erhöht bzw. verringert, je nach Ausrichtung zur spontanen Polarisation, den Abstand der Ladungsschwerpunkte und damit auch die Gitterkonstante c. Wird das piezoelektrische Material hingegen durch mechanische Belastungen parallel zur Polarisation deformiert, so ändern sich ebenfalls die Ladungsschwerpunkte. An den belasteten Oberflächen entstehen dadurch elektrische Ladungen. Dies wird als *direkter* piezoelektrischer Effekt bezeichnet. Bereits kleine Deformationen können dadurch, je nach Material, sehr hohe elektrische Felder verursachen. Beim piezoelektrischen Effekt handelt es sich um ein umkehrbares, in erster Näherung lineares Koppelphänomen [44]. Auch bei symmetrischen Kristallgittern führen elektrische Felder zur Verschiebung der Ionen und damit zu einer Polarisation und einer daraus resultierenden Deformation. Dieser Effekt wird als *Elektrostriktion* bezeichnet. Es handelt sich dabei um einen Effekt höherer Ordnung, der für technische Anwendungen meist zu schwach ist. Daher wird dieser Effekt hier nicht weiter berücksichtigt.

Beim temperaturinduzierten Übergang vom kubischen in das tetragonal verzerrte Kristallgitter können die Ladungsschwerpunkte unterschiedliche Positionen im Kristallgitter einnehmen, die jedoch gleich wahrscheinlich sind. Wie in Abb. 2.2 dargestellt, resultieren daraus drei mögliche Lagen der verzerrten *c-Achsen* sowie sechs mögliche Ausrichtungen der spontanen Polarisation.

Die Ferroelektrizität ermöglicht, dass polykristalline Materialien auf makroskopischer Ebene piezoelektrische Eigenschaften aufzuweisen. Dies ist durch die Ausrichtung der spontanen Polarisation durch ausreichend hohe elektrische Felder möglich. Mechanische Belastungen können die Ausrichtung negativ beeinflussen. Hierbei wird vom *Umklappen* der spontanen Polarisation gesprochen, bei dem sich die Ausrichtung im Kristallgitter um 90° bzw. 180° verändert. Dieses komplexe Phänomen soll nun genauer erläutert werden. Hierzu ist in Abb. 2.3, aus Gründen der Übersichtlichkeit, eine zweidimensionale Ansicht der dreidimensionalen, tetragonalen Einheitszelle dargestellt. Wird, wie

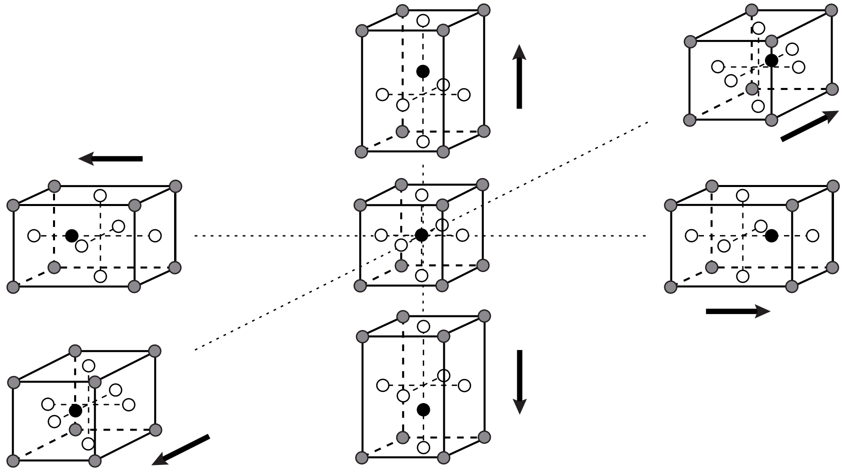


Abbildung 2.2: Die sechs möglichen Ausrichtungen der spontanen Polarisation $\vec{P}_0$ nach dem Übergang von der kubischen in die tetragonale Konfiguration von BT.

in der oberen Zeile dargestellt, ein ausreichend hohes elektrisches Feld E entgegen der spontanen Polarisation aufgebracht, kann diese einerseits zunächst um 90° umklappen. Hierbei sind vier gleich wahrscheinliche Ausrichtungen möglich, wovon zwei dargestellt sind. Bei der weiteren Steigerung des elektrischen Feldes klappt die spontane Polarisation erneut um 90° um. Hierbei ist nur eine Ausrichtung möglich. Ebenso kann sich andererseits die Ausrichtung direkt um 180° ändern. Ein elektrisches Feld in Richtung der spontanen Polarisation kann keinen Umklapprozess verursachen. Wird, wie in der unteren Zeile dargestellt, eine ausreichend hohe mechanische Druckspannung T parallel zur spontanen Polarisation aufgebracht, so klappt die spontane Polarisation um 90° um. Hierbei sind ebenfalls vier gleich wahrscheinliche Ausrichtungen möglich. Die weitere Steigerung der Druckspannung kann keinen weiteren Umklappvorgang induzieren, da die c-Achse aus energetischer Sicht bereits optimal zur Belastung ausgerichtet ist. Dies führt in polykristallinen Keramiken zu einer Verringerung bzw. zur Eliminierung der nutzbaren piezoelektrischen Eigenschaften durch Druckspannungen. Dieser Effekt wird daher

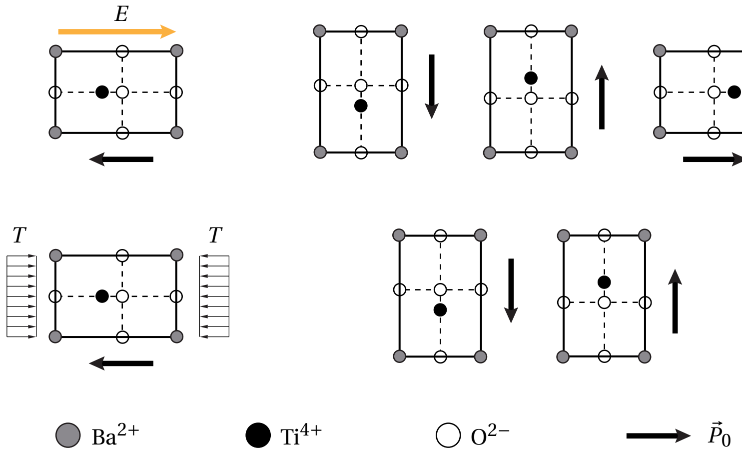


Abbildung 2.3: Einfluss eines elektrischen Feldes (oben) und einer mechanischen Druckspannung (unten) auf die spontane Polarisation in der tetragonalen Einheitszelle von BT, vereinfachend zweidimensional dargestellt.

als mechanische Depolarisation bezeichnet. Eine mechanische Zugspannung parallel zur spontanen Polarisation induziert hingegen generell kein Umklappen der spontanen Polarisation.

Das bisher vorgestellte Materialverhalten gilt nur für monokristalline Materialien. Für diese Materialien bedarf es keiner Unterscheidung zwischen den mikroskopischen und den makroskopischen Eigenschaften. In technischen Anwendungen werden jedoch meist polykristalline Keramikwerkstoffe verwendet, da diese im Vergleich zu Monokristallen einfacher und günstiger durch Sintern hergestellt werden können. Die makroskopischen Eigenschaften hängen nun stark von der polykristallinen Mikrostruktur ab. Dies wird anhand eines Ausschnitts aus einem BT-Polykristall mit ferroelektrischer Ordnung diskutiert. In Abb. 2.4 ist die zugehörige Mikrostruktur nach dem Sintern (links), während der ersten elektrischen Belastung (Mitte links und Mitte rechts) und nach vollständiger Entlastung (rechts) dargestellt. Darin sind Körner zu erken-

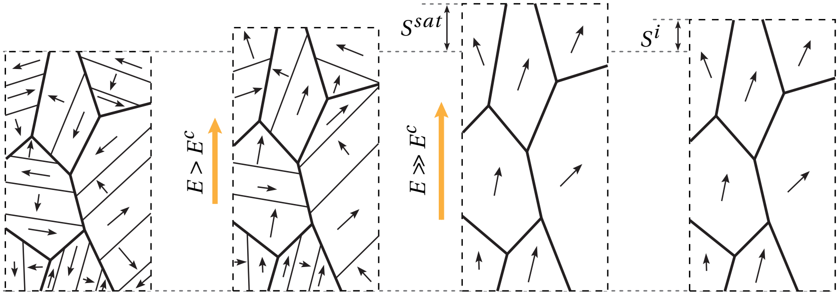


Abbildung 2.4: Schematischer BT-Polykristall mit Körnern, Korngrenzen (dicke Linien), Domänen, Domänenwänden (dünne Linien) und Ausrichtung der spontanen Polarisation $\vec{P}_0$ im thermisch depolarisierten Ausgangszustand (links), während der ersten elektrischen Belastung (Mitte links und Mitte rechts) sowie nach Entlastung (rechts).

nen, die durch Korngrenzen (dicke Linien) voneinander getrennt sind. Innerhalb eines Korns ist die grundlegende Ausrichtung des Kristallgitters gleich, die Ausrichtungen der spontanen Polarisation kann jedoch unterschiedlich sein. Beim Abkühlen nach der Sinterung bilden sich in den Körnern aus thermodynamischen Gründen Bereiche, in denen die spontane Polarisation jeweils gleich ausgerichtet ist. Diese werden als *Domänen* oder nach *Pierre-Ernest Weiss* als *Weisssche Bezirke* bezeichnet [47, 48] und sind durch Domänenwände (dünne Linien) von Domänen mit abweichender Ausrichtung der spontanen Polarisation getrennt. Ist das Abkühlen abgeschlossen, so liegt auf makroskopischer Ebene ein thermisch depolarisierter Zustand vor, da sich die spontane Polarisation in den zufällig ausgerichteten Domänen und Körnern auf makroskopischer Ebene gegenseitig eliminiert. Um technisch nutzbare Eigenschaften des ferroelektrischen Materials zu erhalten, muss die Polarisation in den Domänen und Körnern ausgerichtet werden. Hierzu wird der *Polungsprozess*, das Ausrichten der spontanen Polarisation mit Hilfe eines hohen elektrischen Feldes, durchgeführt: Durch Anlegen eines elektrischen Feldes, das höher als das Koerzitivfeld E^c ist, kommt es zum Umklappen der spontanen Polarisation um 90° und 180°, zur Verschiebung von Domänenwänden

und zur Vereinigung von Domänen. Es entsteht dabei eine Längenänderung in Richtung des elektrischen Feldes. Wird das elektrische Feld weiter gesteigert, klappt die spontane Polarisation in weiteren Domänen um, bis der Zustand der Sättigung erreicht wird, in dem kein weiteres Umklappen mehr stattfindet. Zu diesem Zustand gehört die *Sättigungsdehnung* S^{sat}. Bei der Entlastung des ferroelektrischen Materials bleibt die Ausrichtung der spontanen Polarisation in den Körnern weitgehend unverändert. Im Vergleich zum Anfangszustand verbleibt die irreversible Dehnung S^i, die auch als *remanente* Dehnung bezeichnet wird. Auch quer zum elektrischen Feld verbleiben negative irreversible Dehnungen im Material. Der Betrag dieser Dehnungen entspricht, bedingt durch die Volumenerhaltung, der Hälfte von S^i. Da die spontane Polarisation in den Körnern annähernd in eine Vorzugsrichtung ausgerichtet ist, besitzt das polykristalline Material auch auf makroskopischer Ebene piezoelektrische Eigenschaften. Bedingt durch die feste Ausrichtung des Kristallgitters kann die spontane Polarisation nicht um beliebige Winkel exakt zum elektrischen Feld ausgerichtet werden. Somit kann die maximale makroskopische Sättigungspolarisation P^{sat} des Polykristalls nicht den Wert der spontanen Polarisation des Monokristalls erreichen. Dies gilt ebenso für die daraus resultierenden Dehnungen.

Piezo- und ferroelektrische Materialien weisen bei der elektrischen und mechanischen Belastung, bedingt durch die Umklappvorgänge der Mikrostruktur, ausgeprägte Hysteresen und damit starke Nichtlinearitäten auf. Dies ist eine zusätzliche Herausforderung bezüglich der Nutzung dieser Materialien in technischen Anwendungen. Besonders kritisch ist der hohe Energieverlust in den Hysteresen, der zum Überhitzen von Bauteilen und damit zum Verlust der piezoelektrischen Eigenschaften durch thermische Depolarisation führen kann.

2.2 Besonderheiten von bleifreien NBT-BT(-KNN)-basierten Piezokeramiken

Die im Jahre 2004 entdeckte *morphotrope Phasengrenze* (engl. *morphotropic phase boundary,* MPB) im $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$ (KNN) basierten Materialsystem, wie sie bereits in PZT bekannt war, ermöglicht bleifreie Piezokeramiken, deren piezoelektrische Kopplungseigenschaften mit PZT vergleichbar sind, aber eine höhere thermische Stabilität aufweisen [49]. Unterhalb der Curie Temperatur existieren im Bereich der MPB rhomboedrische und tetragonale Phasen gleichzeitig. Die MPB stellt eines der Schlüsselmerkmale zur Erhöhung der elektromechanischen Kopplungseigenschaften der Piezokeramiken dar. Diese Entdeckung initiierte eine breite Forschungsaktivität zu bleifreien piezoelektrischen Materialsystemen. Eine umfangreiche Übersicht hierzu wird in [50] gegeben. Diese beruht u.a. auf den Review Artikeln [12, 51–54].

Darunter ist auch das NBT-BT(-KNN) Materialsystem, das „gigantische elektrisch induzierte Dehnungen" (engl. *giant electric-field-induced strain*) aufweist [20]. Dieses System dient als Grundlage für die Bestandteile der in Kap. 3 experimentell untersuchten Komposite. Die Besonderheiten dieses Systems werden nun diskutiert.

Bedingt durch die Interaktion der verschiedenen Bestandteile weisen Materialien dieses Systems nach dem Herstellungsprozess (bzw. im thermisch depolarisierten Zustand) im räumlichen Mittel eine kubische Gitterstruktur und folglich keine spontane Polarisation und keine detektierbaren Domänen auf [12, 55–57]. Der Ursprung dieses Verhaltens kann dem chemisch ungeordneten Relaxorzustand zugeordnet werden. Vorhergehende Studien und Veröffentlichungen haben gezeigt, dass ein externes elektrisches Feld [58–60] oder eine mechanische Spannung [61–64] eine ferroelektrische Fernordnung samt des zugehörigen sprunghaften Anstiegs von Polarisation und Dehnung induzieren können. Dieser Effekt kann entweder chemisch durch Hinzufügen weiterer Dotierungssubstanzen, die die ferroelektrische Ordnung destabilisieren und dadurch die kritische Temperatur reduzieren, oder thermisch reguliert

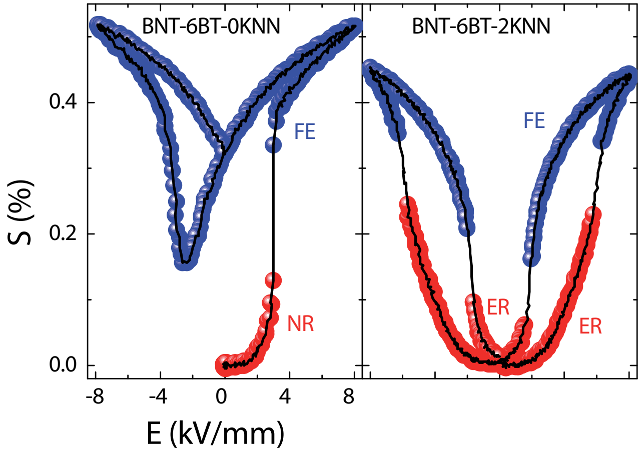


Abbildung 2.5: Dehnungshysteresen von NBT-6BT (links) und NBT-6BT-2KNN (rechts). FE, NR, und ER bezeichnen darin den Zustand des Ferroelektrikums, des nicht-ergodischen Relaxors und des ergodischen Relaxors. Nachdruck aus [12] mit freundlicher Genehmigung von RightsLink® / Springer Nature.

werden [65, 66]. Diese Materialklasse wird als *Relaxor-Ferroelektrika* bzw. abgekürzt als *Relaxor* bezeichnet und kann in zwei Gruppen unterteilt werden. Im *nicht-ergodischen Relaxor* (engl. *non-ergodic relaxor*, NR) ist die ferroelektrische Ordnung in Hinblick auf das elektrische Feld stabil, im *ergodischen Relaxor* (engl. *ergodic relaxor*, ER) instabil. Beide Arten an Relaxoren weisen polare Nanoregionen (engl. *polar nanoreagions*, PNRs) mit willkürlich verteilter Polarisationsrichtung auf, die das globale Verhalten der Werkstoffe maßgebend beeinflussen. Weiterführende Informationen zu Relaxor-Ferroelektrika sind z.B. in den Review Artikeln [67–69] zu finden. Die in Abb. 2.4 dargestellte, idealisierte ferroelektrische Mikrostruktur von BT ist somit nicht direkt auf das NBT-BT(-KNN) Materialsystem übertragbar.

Die aus [12] entnommenen Dehnungshysteresen der Materialien NBT-6BT und NBT-6BT-2KNN sind in Abb. 2.5 dargestellt. NBT-6BT ist ein nicht-ergodischer Relaxor, dessen chemische Mikrostruktur unterhalb des *Polungsfeldes*

E^P einen ungeordneten Zustand besitzt. Bei Erreichen des Polungsfeldes von ca. 3 kV/mm findet ein irreversibler Übergang in den geordneten Zustand eines Ferroelektrikums statt. Die ferroelektrische Fernordnung der Mikrostruktur ist auch bei Wegnahme des elektrischen Feldes stabil und kann nur durch thermische Depolarisation aufgelöst werden. Nach dem Ordnungsübergang zeigt dieser Werkstoff die typische schmetterlingsartige Form der Dehnungshysterese eines Ferroelektrikums. Bedingt durch den irreversiblen Ordnungsübergang können die unteren „Flügelspitzen" jedoch nicht mehr auf Null abfallen. Der mit KNN dotierte ergodische Relaxor NBT-6BT-2KNN zeigt bei Erreichen des Polungsfeldes von ca. 6 kV/mm einen Ordnungsübergang vom Relaxor zum Ferroelektrikum, der nur unter Einwirkung eines ausreichend hohen elektrischen Feldes stabil ist. Bei Wegnahme des elektrischen Feldes fällt das Material in den ungeordneten Relaxorzustand zurück, ohne dass irreversible Dehnungen im Material verbleiben. Dieses Material zeigt eine für ergodische Relaxoren typische Form eines „Keimlings" (engl. *sprout*). Durch die extreme Differenz zwischen der maximalen und der irreversiblen Dehnung (die für dieses Material vernachlässigbar ist), wäre dieser Werkstoff ideal für Anwendungen als Aktuator. Hierzu sind jedoch extrem hohe elektrische Felder mit bis zu 8 kV/mm notwendig, die die Durchschlagfestigkeit von Luft um ein Vielfaches übersteigen. Ebenso ist eine starke Temperaturabhängigkeit des Polungsfelds vorhanden. Daher kann NBT-6BT-2KNN in technischen Anwendungen nicht alleine verwendet werden.

Die beiden Materialien unterscheiden sich deutlich in der Form der Dehnungshysteresen, den maximalen, minimalen und remanenten Dehnungen, im Polungsfeld, das zum Erzeugen der ferroelektrischen Ordnung notwendig ist, und in deren Stabilität. Diese Unterschiede resultieren aus der Zugabe von KNN in das NBT-BT Materialsystem, die die Übergangstemperaturen zwischen den verschiedenen Phasen des Materials senkt. Darum zeigt NBT-6BT-2KNN reversible Übergänge zwischen der ER und der FE Phase.

2.3 Modellierungsgrundlagen

In diesem Unterkapitel werden die physikalischen Grundlagen zur Modellierung von ferroelektrischen Materialien vorgestellt. Zunächst werden die elektrischen und mechanischen Grundlagen und Bilanzgleichungen in ungekoppelter Form beschrieben. Im Anschluss daran folgt die elektromechanische Kopplung der linearen Piezoelektrizität. Dabei sind Vektoren durch Buchstaben mit darüberliegenden Vektorpfeilen, Tensoren zweiter, dritter oder vierter Stufe durch fettgedruckte Buchstaben, kleine Doppelbuchstaben und große Doppelbuchstaben, z.B. $\vec{E}$, $\boldsymbol{S}$, $\mathbb{e}$ und $\mathbb{C}$, dargestellt. Zur mathematischen Beschreibung der Vektor- und Tensorfelder werden die folgenden Differentialoperatoren der Vektor- und Tensoranalysis mit Hilfe des Gradientenoperators (Nabla-Operator)

$$\mathrm{grad} = \nabla = \begin{bmatrix} \frac{\partial}{\partial x_1} \\ \frac{\partial}{\partial x_2} \\ \frac{\partial}{\partial x_3} \end{bmatrix} \tag{2.1}$$

für den dreidimensionalen Raum definiert. Für ein beliebiges, glattes Skalarfeld ϕ berechnet sich der Gradient zu

$$\mathrm{grad}\left(\phi\right) = \nabla\phi = \begin{bmatrix} \frac{\partial \phi}{\partial x_1} \\ \frac{\partial \phi}{\partial x_2} \\ \frac{\partial \phi}{\partial x_3} \end{bmatrix}. \tag{2.2}$$

Für ein beliebiges, glattes Vektorfeld $\vec{F} = [F_1\ F_2\ F_3]^{\mathsf{T}}$ berechnet sich der Gradient zu

$$\mathrm{grad}\left(\vec{F}\right) = \nabla\vec{F} = \begin{bmatrix} \frac{\partial F_1}{\partial x_1} & \frac{\partial F_1}{\partial x_2} & \frac{\partial F_1}{\partial x_3} \\ \frac{\partial F_2}{\partial x_1} & \frac{\partial F_2}{\partial x_2} & \frac{\partial F_2}{\partial x_3} \\ \frac{\partial F_3}{\partial x_1} & \frac{\partial F_3}{\partial x_2} & \frac{\partial F_3}{\partial x_3} \end{bmatrix}, \tag{2.3}$$

die Divergenz zu

$$\mathrm{div}\left(\vec{F}\right) = \nabla \cdot \vec{F} = \frac{\partial F_1}{\partial x_1} + \frac{\partial F_2}{\partial x_2} + \frac{\partial F_3}{\partial x_3}, \tag{2.4}$$

und die Rotation zu

$$\operatorname{rot}\left(\vec{F}\right) = \nabla \times \vec{F} = \begin{bmatrix} \frac{\partial F_3}{\partial x_2} - \frac{\partial F_2}{\partial x_3} \\ \frac{\partial F_1}{\partial x_3} - \frac{\partial F_3}{\partial x_1} \\ \frac{\partial F_2}{\partial x_1} - \frac{\partial F_1}{\partial x_2} \end{bmatrix}. \tag{2.5}$$

Für ein beliebiges, glattes Tensorfeld zweiter Stufe $\boldsymbol{a} = a_{ij}\vec{e}_i \otimes \vec{e}_j$ berechnet sich die Divergenz zu

$$\operatorname{div}(\boldsymbol{a}) = \nabla \cdot \boldsymbol{a} = \begin{bmatrix} \frac{\partial a_{11}}{\partial x_1} + \frac{\partial a_{12}}{\partial x_2} + \frac{\partial a_{13}}{\partial x_3} \\ \frac{\partial a_{21}}{\partial x_1} + \frac{\partial a_{22}}{\partial x_2} + \frac{\partial a_{23}}{\partial x_3} \\ \frac{\partial a_{31}}{\partial x_1} + \frac{\partial a_{32}}{\partial x_2} + \frac{\partial a_{33}}{\partial x_3} \end{bmatrix}. \tag{2.6}$$

Mit diesen Beziehungen können nun die physikalischen Grundlagen der piezo- und ferroelektrischen Werkstoffe betrachtet werden.

2.3.1 Elektrische Grundlagen

Der Ausgangspunkt zur Beschreibung des elektrischen Verhaltens der untersuchten ferroelektrischen Werkstoffe sind die nach *James Clerk Maxwell* (1831-1879) benannten makroskopischen Maxwell-Gleichungen

$$\operatorname{rot}(\vec{H}) = \vec{J} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \tag{2.7}$$

$$\operatorname{rot}(\vec{E}) = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \tag{2.8}$$

$$\operatorname{div}(\vec{D}) = q^F \tag{2.9}$$

$$\operatorname{div}(\vec{B}) = 0, \tag{2.10}$$

die die Phänomene des Elektromagnetismus und somit die Wechselwirkungen zwischen elektrischen und magnetischen Feldern bzw. zwischen elektrischen Ladungen und Strömen beschreiben [70]. Die Maxwell-Gleichungen bilden zusammen mit der nach *Hendrik Antoon Lorentz* (1853-1928) benannte Lorentzkraft die theoretischen Grundlagen der klassischen Elektrodynamik, der Optik und der Elektrotechnik.

Die Maxwell-Gleichungen bestehen aus einem System von vier linearen partiellen Differentialgleichungen erster Ordnung, das hier in der differentiellen Form mit SI Einheiten angegeben ist.

Nun werden die einzelnen Gleichungen und die darin enthaltenen physikalischen Größen erläutert: Das nach *André-Marie Ampère* (1775-1836) benannte Ampèresche Gesetz (Durchflutungsgesetz), Gl. (2.7), beschreibt den Zusammenhang zwischen den Wirbeln des magnetischen Feldes $\vec{H}$, der elektrischen Stromdichte $\vec{J}$ sowie der zeitlichen Änderung der dielektrischen Verschiebung (elektrische Flussdichte) $\vec{D}$. Das nach *Michael Faraday* (1791-1869) benannte Faradaysche Induktionsgesetz, Gl. (2.8), beschreibt den Zusammenhang zwischen den Wirbeln des elektrischen Feldes $\vec{E}$ und der zeitlichen Änderung der magnetischen Flussdichte (magnetische Durchflutung) $\vec{B}$. Das nach *Johann Carl Friedrich Gauß* (1777-1855) benannte Gaußsche Gesetz, Gl. (2.9), beschreibt den Zusammenhang zwischen der dielektrischen Verschiebung und der freie Ladungsdichte q^F. Daraus schlussfolgernd sind Ladungen Quellen und Senken der dielektrischen Verschiebung. Das Gaußsche Gesetz für Magnetfelder, Gl. (2.10), beschreibt die Quellfreiheit der magnetischen Felder. Es existieren keine magnetischen Monopole bzw. Elementarladungen. In Materie werden die Größen $\vec{B}$, $\vec{H}$ und $\vec{J}_{mag}$ bzw. $\vec{D}$, $\vec{E}$ und $\vec{P}$ durch die allgemeingültigen Definitionen

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} + \vec{J}_{mag} \tag{2.11}$$

und

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \tag{2.12}$$

miteinander verknüpft. Dabei sind μ_0 und ε_0 die magnetische und die elektrische Feldkonstanten. Um eine Verwechslung zu vermeiden, wird hier auf den Unterschied zwischen der elektrischen Stromdichte $\vec{J}$ und der magnetischen Polarisation $\vec{J}_{mag}$ hingewiesen.

Der Zusammenhang zwischen Strom- und Ladungsdichte kann durch die Ladungserhaltung

$$\mathrm{div}(\vec{J}) + \frac{\partial q^F}{\partial t} = 0 \tag{2.13}$$

bestimmt werden. Die mathematische Struktur dieser Gleichung ist identisch zur Massenerhaltung. Die Ladungserhaltung ist implizit in den Maxwell-Gleichungen enthalten. Dies kann durch einfache Rechenoperationen mit den Gleichungen (2.7) und (2.9) bewiesen werden.

In dieser Arbeit werden nur quasi-elektrostatische Phänomene berücksichtigt. Die untersuchten ferroelektrischen Keramiken gehören aufgrund der sehr geringen spezifischen elektrischen Leitfähigkeiten $\boldsymbol{\sigma}$ der Gruppe der Halbleiter an. Bei deren Belastung entstehen trotz der hohen aufgebrachten elektrischen Felder nur kleine Ströme und somit finden nur geringe Ladungstransporte statt. Die elektromagnetische Kopplung wird daher vernachlässigt. Ebenso kann eine Berücksichtigung relativistischer Effekte ausbleiben. Weitere Details zur quasi-elektrostatischen Annahme sind in [71] zu finden. Somit können die Maxwell-Gleichungen unter Annahme von $\frac{\mathrm{d}\vec{B}}{\mathrm{d}t} \approx 0$ erheblich vereinfacht werden, da die Kopplung zwischen elektrischen und magnetischen Effekten entfällt. Die magnetischen Größen werden in dieser Arbeit nicht weiter betrachtet. Somit folgen die quasi-elektrostatischen Maxwell-Gleichungen, bestehend aus dem Faradayschen Gesetz

$$\mathrm{rot}(\vec{E}) = 0 \tag{2.14}$$

und dem Gaußschen Gesetz

$$\mathrm{div}(\vec{D}) = q^F. \tag{2.15}$$

Da das elektrische Feld nach Gl. (2.14) rotationsfrei ist, kann es durch den negativen Gradienten des skalarwertigen elektrischen Potentials zu

$$\vec{E} = -\,\mathrm{grad}(\varphi) \tag{2.16}$$

bestimmt werden. Elektrische Felder zeigen vom Ort des höheren Potentials in Richtung des Orts mit niedrigerem Potential. Der mathematische Gradient-Operator ist konträr definiert, weswegen die Richtung durch das Minus korrigiert werden muss.

Die freie Ladungsdichte q^F kann aus dem Gauß'schen Gesetz Gl. (2.15) eliminiert werden, in dem dessen zeitliche Ableitung $\operatorname{div}\left(\frac{\partial \vec{D}}{\partial t}\right) = \frac{\partial q^F}{\partial t}$ gebildet und die zeitliche Änderung der freien Ladungsdichte in der Ladungserhaltung nach Gl. (2.13) mit $\operatorname{div}\left(\frac{\partial \vec{D}}{\partial t}\right)$ substituiert wird. Dabei kann die Zeitableitung in die Divergenz $\frac{\partial}{\partial t}\left(\operatorname{div}(\vec{D})\right) = \operatorname{div}\left(\frac{\partial \vec{D}}{\partial t}\right)$ gezogen werden. Es folgt die skalare Bilanzgleichung unter Berücksichtigung der elektrischen Leitfähigkeit zu

$$\operatorname{div}\left(\frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{J}\right) = 0, \tag{2.17}$$

in der die zeitliche Änderung der dielektrischen Verschiebung $\frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$ mit der Stromdichte $\vec{J}$ bilanziert wird. Die Stromdichte $\vec{J}$ wird durch eine konstitutive Beziehung wie z.B. dem Ohm'schen Gesetz

$$\vec{J} = \boldsymbol{\sigma} \cdot \vec{E} \tag{2.18}$$

durch die spezifische elektrische Leitfähigkeit $\boldsymbol{\sigma}$ (Tensor zweiter Stufe mit i.a. neun Komponenten) als Proportionalitätsfaktor in linearer Abhängigkeit des elektrischen Feldes definiert. Hierbei steht $\cdot$ für das Punktprodukt. Im Falle der vollständig isotropen Leitfähigkeit wird der Leitfähigkeitstensor $\boldsymbol{\sigma} = \sigma \boldsymbol{I}$ durch die skalare Leitfähigkeit σ und den Einheitstensor zweiter Stufe $\boldsymbol{I}$ aufgebaut.

Unter Vernachlässigung der elektrischen Leitfähigkeit und somit unter der Annahme eines idealen Nichtleiters, verschwindet die freie Ladungsdichte q^F und das Gauß'sche Gesetz nach Gl. (2.15) vereinfacht sich zu der Bilanzgleichung

$$\operatorname{div}(\vec{D}) = 0. \tag{2.19}$$

Die urspünglich acht gekoppelten Maxwell-Gleichungen reduzieren sich im quasi-elektrostatischen Fall sowohl mit also auch ohne Berücksichtigung der elektrischen Leitfähigkeit zu einer einzelnen skalaren Bilanzgleichung. Weitere Details zur quasi-elektrostatischen Annahme sind u.a. in [71] zu finden.

2.3.2 Mechanische Grundlagen

Das mechanische Verhalten der untersuchten keramischen Werkstoffe unter quasi-statischer Belastung kann mit der Theorie der kleinen Deformationen beschrieben werden, die kleine Verschiebungen und kleine Rotationen voraussetzt. Alle Größen beziehen sich dabei auf den Anfangszustand. Als Maß der Deformation wird der lineare Verzerrungstensor zweiter Stufe

$$\boldsymbol{S} = \frac{1}{2}\left(\operatorname{grad}(\vec{u}) + \operatorname{grad}(\vec{u})^{\mathsf{T}}\right) \tag{2.20}$$

verwendet, der als symmetrischer Gradient des Verschiebungsvektors $\vec{u}$ definiert ist. Der Index $(\bullet)^{\mathsf{T}}$ steht für die mathematische Operation der Transposition. Aufgrund der Symmetriebedingung $S_{ij} = S_{ji}$ sind drei der neun Komponenten des Verzerrungstensors redundant und folglich verbleiben sechs unabhängige Komponenten.

Das dynamische Kräftegleichgewicht, auch Impulsbilanz genannt,

$$\rho\ddot{\vec{u}} = \operatorname{div}(\boldsymbol{T}) + \vec{f}^{B} \tag{2.21}$$

bilanziert die dynamischen Kräfte, das Produkt von Massendichte ρ und Beschleunigung $\ddot{\vec{u}}$ als zweifache Zeitableitung des Verschiebunsvektors $\vec{u}$, mit den statischen Größen, der Divergenz des Cauchy Spannungstensor $\boldsymbol{T}$ und der Volumenkräfte $\vec{f}^{B}$ wie z.B. der Gravitation. Sind dynamische Effekte wie in dieser Arbeit vernachlässigbar, so erhält man das quasi-statische Kräftegleichgewicht

$$\operatorname{div}(\boldsymbol{T}) + \vec{f}^{B} = 0. \tag{2.22}$$

Der Spannungstensor wird durch eine Konstitution wie z.B. dem Hooke'schen Gesetz

$$\boldsymbol{T} = \mathbb{C}^{E} : \boldsymbol{S}, \tag{2.23}$$

definiert. Dieses lineare Elastizitätsgesetz stellt ein Sonderfall der Hyperelastizität dar und wird durch den Steifigkeitstensor unter konstant gehaltenem

elektrischen Feld $\mathbb{C}^E$ (Tensor vierter Stufe mit i.a. 81 Komponenten) als Proportionalitätsfaktor und dem Verzerrungstensor $\boldsymbol{S}$ in linearer Abhängigkeit definiert. Hierbei steht : für die doppelte Kontraktion. Im rein mechanischen Kontext ist das hochgestellte E beim Symbol des Steifigkeitstensors nicht notwendig, bei dem später betrachteten elektromechanisch gekoppelten Materialverhalten wird es jedoch benötigt.

Die Drehimpulsbilanz

$$\boldsymbol{T} - \boldsymbol{T}^{\mathsf{T}} = \boldsymbol{0} \tag{2.24}$$

fordert einen symmetrischen Spannungstensor mit $T_{ij} = T_{ji}$. Analog zum Verzerrungstensor weist dieser ebenso sechs unabhängige Komponenten auf. Um die Drehimpulsbilanz zu erfüllen muss der Steifigkeitstensor $\mathbb{C}^E$ die Nebensymmetriebedingungen $C^E_{ijkl} = C^E_{jikl}$ und $C^E_{ijkl} = C^E_{ijlk}$ erfüllen. Die Hauptsymmetrie $C^E_{ijkl} = C^E_{klij}$ folgt bei hyperelastischen Materialien, von denen das Hooke'sche Gesetz einen Sonderfall dieser Materialklasse darstellt, aus der Vertauschbarkeit der partiellen Ableitungen nach dem *Satz von Schwarz*. Somit reduziert sich die Zahl der unabhängigen Komponenten auf 21. Liegen weitere Symmetrien im Material vor, so reduziert sich die Zahl der unabhängigen Komponenten. Im Falle des vollständig isotropen mechanischen Materialverhaltens werden lediglich zwei unabhängige Komponenten benötigt. Der isotrope Steifigkeitstensor $\mathbb{C}^E$ unter konstantem elektrischen Feld berechnet sich z.B. in Abhängigkeit des Elastizitätsmoduls Y und der Querdehnzahl ν bzw. der beiden Lamé Parameter

$$\lambda = \frac{Y\nu}{(1+\nu)(1-2\nu)} \tag{2.25}$$

$$\mu = \frac{Y}{2(1+\nu)} \tag{2.26}$$

zu

$$\mathbb{C}^E = \lambda \boldsymbol{I} \otimes \boldsymbol{I} + 2\mu \mathbb{I}^{sym}, \tag{2.27}$$

wobei $\boldsymbol{I}$ den Einheitstensor zweiter Stufe, $\mathbb{I}^{sym}_{ijkl} = \frac{1}{2}(\delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk})$ den symmetrischen Anteil des Einheitstensors vierter Stufe und $\otimes$ das dyadische Produkt darstellen. Weitere Details zur Kontinuumsmechanik sind in [72] aufgeführt.

2.3.3 Lineare Piezoelektrizität

In den vorherigen beiden Abschnitten wurden die elektrischen und mechanischen Grundlagen samt der zugehörigen Bilanzgleichungen voneinander entkoppelt präsentiert. Die Besonderheit von piezo- und ferroelektrischem Materialverhalten besteht jedoch in der elektromechanischen Kopplung. Diese wird durch die piezoelektrischen Materialgleichungen beschrieben, die im Folgenden aus der linearen Thermodynamik piezoelektrischer Festkörper entwickelt werden. Die hier präsentierte Herleitung orientiert sich an der Herleitung in [73]. Weitere Details sind in [44] zu finden.

Der erste Haupsatz der Thermodymanik

$$\mathrm{d}U = \mathrm{d}Q + \mathrm{d}W \tag{2.28}$$

beschreibt die Energieerhaltung in thermodynamischen Systemen. In dieser Gleichung stehen $\mathrm{d}U$, $\mathrm{d}Q$ und $\mathrm{d}W$ für die infinitesimale Änderung der inneren Energie, der zugeführten Wärmeenergie und der verrichteten Arbeit. Die physikalische Aussage dieses Satzes lautet: In einem abgeschlossenen System ist die Energie konstant und kann weder erzeugt noch vernichtet werden. Die geleistete Arbeit kann in elektrische und mechanische Anteile zerlegt werden

$$\mathrm{d}U = \underbrace{-\operatorname{div}(\vec{q}) + \rho r}_{\mathrm{d}Q} + \underbrace{\boldsymbol{T} : \mathrm{d}\boldsymbol{S}}_{\mathrm{d}W^{mech}} + \underbrace{\vec{E} \cdot \mathrm{d}\vec{D} + \vec{E} \cdot \vec{J}}_{\mathrm{d}W^{el}}, \tag{2.29}$$

wobei $\vec{q}$ den in das Gebiet hinein gerichteten Wärmeflussvektor und das Produkt aus der Massendichte ρ und der spezifischen Wärmeproduktion r die

Wärmezufuhr ρr darstellt. Da der Normalenvektor $\vec{n}$ der Oberfläche aus dem Gebiet heraus gerichtet ist, muss dies durch das Minus im Beitrag von $\vec{q}$ korrigiert werden. Dies kann unter Anwendung des Gauß'schen Divergenz Theorems leicht nachvollzogen werden.

Die lokale Formulierung des zweiten Haupsatzes der Thermodynamik wird in der für die Kontinuumsmechanik üblichen Form der Clausius-Duhem-Ungleichung

$$\rho \frac{\mathrm{d}\eta}{\mathrm{d}t} + \mathrm{div}\left(\frac{\vec{q}}{\Theta}\right) - \rho \frac{r}{\Theta} \geq 0 \tag{2.30}$$

beschrieben. Dabei sind $\rho\eta$ die volumenspezifische Entropie, das Produkt aus der Massendichte ρ und der spezifischen Entropie η, und Θ die absolute Temperatur.

Die innere Energie U wird mit Hilfe der Legendre Transformation zur freien Energie Funktion

$$F(\boldsymbol{S}, \vec{D}, \Theta) = U - \rho\eta\Theta \tag{2.31}$$

transformiert. Durch Bildung des totalen Differential und Einsetzen von Gl. (2.29) folgt

$$\mathrm{d}F = \mathrm{d}U - \rho\eta\,\mathrm{d}\Theta \tag{2.32}$$

$$= \boldsymbol{T} : \mathrm{d}\boldsymbol{S} + \vec{E} \cdot \mathrm{d}\vec{D} + \vec{E} \cdot \vec{J} - \mathrm{div}(\vec{q}) + \rho r - \rho\eta\,\mathrm{d}\Theta, \tag{2.33}$$

umgeformt

$$\mathrm{div}(\vec{q}) - \rho r = -\mathrm{d}F + \boldsymbol{T} : \mathrm{d}\boldsymbol{S} - \rho\eta\,\mathrm{d}\Theta + \vec{E} \cdot \mathrm{d}\vec{D} + \vec{E} \cdot \vec{J}. \tag{2.34}$$

Bei Beschränkung auf isotherme Prozesse mit uniformer Temperaturverteilung bleibt die Temperatur des Systems in Raum und Zeit unverändert, d.h. $\Theta(\vec{x}, t) =$ constant und $\mathrm{d}\Theta = 0$ bzw. $\mathrm{grad}(\Theta) = \vec{0}$. Die Clausius-Duhem-Ungleichung nach Gl. (2.30) kann daher durch Multiplikation mit Θ zu

$$\mathrm{div}\left(\vec{q}\right) - \rho r \geq 0 \tag{2.35}$$

umgeformt werden. Durch Einsetzen von Gl. (2.34) folgt

$$-\,\mathrm{d}F + \boldsymbol{T} : \mathrm{d}\boldsymbol{S} + \vec{E} \cdot \mathrm{d}\vec{D} + \vec{E} \cdot \vec{J} \geq 0. \tag{2.36}$$

Dies ist die thermodynamische Anforderung, die durch das Materialmodell erfüllt werden muss. Jede beliebige Funktion $\hat{F}$, die diese Ungleichung erfüllt, kann als thermodynamisch konsistent angesehen werden.

Für die piezoelektrischen Gleichungen mit den unabhängigen Variablen $\boldsymbol{S}$ und $\vec{D}$ wird nun für die freie Energie Funktion der Ansatz

$$\hat{F} = \hat{F}(\boldsymbol{S}, \vec{D}) \tag{2.37}$$

gewählt, dessen Ableitung zu

$$\mathrm{d}\hat{F} = \left.\frac{\partial \hat{F}}{\partial \boldsymbol{S}}\right|_{\vec{D}} : \mathrm{d}\boldsymbol{S} + \left.\frac{\partial \hat{F}}{\partial \vec{D}}\right|_{\boldsymbol{S}} \cdot \mathrm{d}\vec{D} \tag{2.38}$$

folgt. Die tiefgestellten Variablen verdeutlichen die während der Differentiation konstant gehaltenen Größen. Durch Einsetzen von $\mathrm{d}\hat{F}$ in Gl. (2.36) folgt

$$\left(\boldsymbol{T} - \left.\frac{\partial \hat{F}}{\partial \boldsymbol{S}}\right|_{\vec{D}}\right) : \mathrm{d}\boldsymbol{S} + \left(\vec{E} - \left.\frac{\partial \hat{F}}{\partial \vec{D}}\right|_{\boldsymbol{S}}\right) \cdot \mathrm{d}\vec{D} + \vec{E} \cdot \vec{J} \geq 0. \tag{2.39}$$

Aus dieser Gleichung lassen sich die Definitionen der abhängigen Variablen, der mechanischen Spannung

$$\boldsymbol{T} = \left.\frac{\partial \hat{F}}{\partial \boldsymbol{S}}\right|_{\vec{D}}, \tag{2.40}$$

und des elektrische Feldes

$$\vec{E} = \left.\frac{\partial \hat{F}}{\partial \vec{D}}\right|_{\boldsymbol{S}}, \tag{2.41}$$

sowie die Bedingung

$$\vec{E} \cdot \vec{J} \geq 0 \tag{2.42}$$

ableiten. Letztere wird z.B. unter Verwendung des Ohm'schen Gesetzes nach Gl. (2.18) mit isotroper Leitfähigkeit erfüllt, falls $\sigma \geq 0$ gilt, was durch Einsetzen des Ohm'schen Gesetzes leicht aus der Beziehung

$$\vec{E}^{\mathsf{T}} \cdot \sigma \boldsymbol{I} \cdot \vec{E} \geq 0 \tag{2.43}$$

ersichtlich ist, da das elektrische Feld quadratisch in diese Ungleichung eingeht. Dies entspricht dem Verständnis, dass ein Leitwert keinen negativen Wert annehmen darf. Ebenso erfüllen ideale Nichtleiter mit $\sigma = 0$ diese Bedingung.

Aus den totalen Differentialen der abhängigen Variablen $\boldsymbol{T}$ und $\vec{E}$ ergibt sich die allgemeine Form der konstitutiven Gleichungen der Piezoelektrizität zu

$$\mathrm{d}\boldsymbol{T} = \left.\frac{\partial \boldsymbol{T}}{\partial \boldsymbol{S}}\right|_{\vec{D}} : \mathrm{d}\boldsymbol{S} + \left.\frac{\partial \boldsymbol{T}}{\partial \vec{D}}\right|_{\boldsymbol{S}} : \mathrm{d}\vec{D} = \left.\frac{\partial^2 \hat{F}}{\partial \boldsymbol{S} \partial \boldsymbol{S}}\right|_{\vec{D}} : \mathrm{d}\boldsymbol{S} + \left.\frac{\partial^2 \hat{F}}{\partial \boldsymbol{S} \partial \vec{D}}\right|_{\boldsymbol{S}} : \mathrm{d}\vec{D} \tag{2.44}$$

und

$$\mathrm{d}\vec{E} = \left.\frac{\partial \vec{E}}{\partial \boldsymbol{S}}\right|_{\vec{D}} : \mathrm{d}\boldsymbol{S} + \left.\frac{\partial \vec{E}}{\partial \vec{D}}\right|_{\boldsymbol{S}} : \mathrm{d}\vec{D} = \left.\frac{\partial^2 \hat{F}}{\partial \vec{D} \partial \boldsymbol{S}}\right|_{\vec{D}} : \mathrm{d}\boldsymbol{S} + \left.\frac{\partial^2 \hat{F}}{\partial \vec{D} \partial \vec{D}}\right|_{\boldsymbol{S}} : \mathrm{d}\vec{D}. \tag{2.45}$$

Aus diesen beiden Gleichungen können die folgenden Materialtensoren identifiziert werden:

Der mechanische Steifigkeitstensor vierter Stufe

$$\mathbb{C}^{D} = \left.\frac{\partial \boldsymbol{T}}{\partial \boldsymbol{S}}\right|_{\vec{D}} = \left.\frac{\partial^2 \hat{F}}{\partial \boldsymbol{S} \partial \boldsymbol{S}}\right|_{\vec{D}} \tag{2.46}$$

beschreibt den Widerstand gegen mechanische Verzerrungen unter konstanter dielektrischer Verschiebung $\vec{D}$, der zu dem in Kap. 2.3.2 eingeführten Tensor $\mathbb{C}^{E}$ unter konstantem elektrischen Feld $\vec{E}$ analoge Symmetrieeigenschaften und somit ebenfalls maximal 21 unabhängige Komponenten aufweist.

Der piezoelektrische Tensor dritter Stufe

$$\mathbb{h} = -\left.\frac{\partial \vec{E}}{\partial \vec{D}}\right|_{\boldsymbol{S}} = -\left.\frac{\partial^2 \hat{F}}{\partial \boldsymbol{S} \partial \vec{D}}\right|_{\boldsymbol{S}} \quad \text{bzw.} \quad \mathbb{h}^{\mathsf{T}} = -\left.\frac{\partial \vec{E}}{\partial \boldsymbol{S}}\right|_{\vec{D}} = -\left.\frac{\partial^2 \hat{F}}{\partial \vec{D} \partial \boldsymbol{S}}\right|_{\vec{D}} \tag{2.47}$$

wird durch die Ableitungen nach beiden unabhängigen Größen definiert und beschreibt somit die elektromechanische Kopplung unter konstanten Verzerrungen bzw. dielektrischer Verschiebung. Der Konvention folgend wird der piezoelektrische Tensor mit den negativen Ableitungen definiert. Der piezoelektrische Tensor besitzt die aus der Vertauschbarkeit der partiellen Ableitungen folgende Symmetrie $h_{ijk} = h_{kij}$ sowie die aus der Drehimpulsbilanz resultierende Symmetrie $h_{ijk} = h_{jik}$ bzw. $h_{kij} = h_{kji}$. Im allgemeinen Fall weist der piezoelektrische Tensor somit 18 unabhängige Komponenten auf.

Der Impermittivitätstensor

$$\boldsymbol{\beta}^S = \left.\frac{\partial \vec{E}}{\partial \vec{D}}\right|_{\boldsymbol{S}} = \left.\frac{\partial^2 \hat{F}}{\partial \vec{D} \partial \vec{D}}\right|_{\boldsymbol{S}} \tag{2.48}$$

ist ein Tensor zweiter Stufe und beschreibt unter konstanter Verzerrung den Einfluss der dielektrischen Verschiebung auf das elektrische Feld. Für diesen Tensor gilt die Symmetrie $\beta_{ij} = \beta_{ji}$ und somit beinhaltet dieser maximal sechs unabhängige Komponenten.

Mit den drei definierten Materialtensoren $\mathbb{C}^D$, $\mathbb{h}$ und $\boldsymbol{\beta}^S$ lassen sich aus den Gleichungen 2.40 und 2.41 die linearen piezoelektrischen Gleichungen

$$\boldsymbol{T} = \mathbb{C}^D : \boldsymbol{S} - \mathbb{h} \cdot \vec{D} \tag{2.49}$$

$$\vec{E} = -\mathbb{h}^{\mathsf{T}} : \boldsymbol{S} + \boldsymbol{\beta}^S \cdot \vec{D} \tag{2.50}$$

in der *h-Form* ableiten.

Die elektromechanisch gekoppelte freie Energiedichtefunktion in der quadratischen Form

$$\hat{F} = \frac{1}{2}\boldsymbol{S} : \mathbb{C}^D : \boldsymbol{S} - \vec{D} \cdot \mathbb{h}^\mathsf{T} : \boldsymbol{S} + \frac{1}{2}\vec{D} \cdot \boldsymbol{\beta} \cdot \vec{D} \tag{2.51}$$

$$= \frac{1}{2}\left(\underbrace{\boldsymbol{S} : \mathbb{C}^D : \boldsymbol{S} - \vec{D} \cdot \mathbb{h}^\mathsf{T} : \boldsymbol{S}}_{=\boldsymbol{T}:\boldsymbol{S}} \underbrace{- \vec{D} \cdot \mathbb{h}^\mathsf{T} : \boldsymbol{S} + \vec{D} \cdot \boldsymbol{\beta} \cdot \vec{D}}_{=\vec{E}\cdot\vec{D}} \right) \tag{2.52}$$

$$= \frac{1}{2}\left(\boldsymbol{T} : \boldsymbol{S} + \vec{E} \cdot \vec{D}\right) \tag{2.53}$$

stellt die einfachst mögliche Funktion dar, die die thermodynamischen Anforderungen nach Gl. (2.36) erfüllt.

Eine Überischt über die verschieden Formen der linearen piezoelektrischen Gleichungen, die sich durch die Wahl der unabhängigen Variablen und der zugehörigen Energiefunktionen unterscheiden, ist in Tab. 2.1 aufgeführt. Diese wurde aus [44] entnommen. Die darin enthaltenen kursiven Indices $(\bullet)^E$, $(\bullet)^P$, $(\bullet)^D$, $(\bullet)^S$ und $(\bullet)^T$ stehen für Größen, die unter jeweils konstant gehaltenem elektrischem Feld $\vec{E}$, Polarisation $\vec{P}$, dielektrischer Verschiebung $\vec{D}$, Verzerrungen $\boldsymbol{S}$ und mechanischen Spannungen $\boldsymbol{T}$ gelten. Das Symbol der Transposition wird durch ein nicht kursives, serifenloses $(\bullet)^\mathsf{T}$ dargestellt.

Bei experimentellen Untersuchungen wird anstatt der dielektrischen Verschiebung das elektrische Feld als unabhängige Größe betrachtet, da dies leichter gesteuert und gemessen werden kann. Die zugehörige e-Form der piezoelektrischen Gleichungen mit dem Steifigkeitstensor $\mathbb{C}^E$, dem piezoelektrischen Tensor $\mathbb{d}$ und dem Permittivitätstensor $\boldsymbol{\epsilon}^S$ kann Tab. 2.1 entnommen werden.

Auch bei Simulationen mit der Finite-Elemente-Methode wird häufig die e-Form verwendet. Für die nachfolgenden hybriden Finite-Elemente-Formulierungen ist die h-Form notwendig. Dadurch ist es erforderlich, die experimentell ermittelten Materialtensoren $\mathbb{C}^E$, $\mathbb{d}$ und $\boldsymbol{\kappa}^T$ über die aus [44] entnommen Beziehungen

$$\boldsymbol{\epsilon}^T = \boldsymbol{\epsilon}_0 + \boldsymbol{\kappa}^T \tag{2.54}$$

$$\boldsymbol{\beta}^S = (\boldsymbol{\epsilon}^S)^{-1} \tag{2.55}$$

$$\mathbb{e}^{\mathsf{T}} = \mathbb{d}^{\mathsf{T}} : \mathbb{C}^E \tag{2.56}$$

$$\mathbb{h}^{\mathsf{T}} = \boldsymbol{\beta}^S \cdot \mathbb{e}^{\mathsf{T}} \tag{2.57}$$

$$\boldsymbol{\epsilon}^S = \boldsymbol{\epsilon}^T - \mathbb{d}^{\mathsf{T}} : \mathbb{C}^E : \mathbb{d} = \boldsymbol{\epsilon}^T - \mathbb{e}^{\mathsf{T}} : \mathbb{d} \tag{2.58}$$

$$\mathbb{C}^D = \mathbb{C}^E + \mathbb{h} \cdot \boldsymbol{\epsilon}^S \cdot \mathbb{h}^{\mathsf{T}} = \mathbb{C}^E + \mathbb{e} \cdot \mathbb{h}^{\mathsf{T}} \tag{2.59}$$

in die benötigten Tensoren $\mathbb{C}^D$, $\mathbb{h}$ und $\boldsymbol{\beta}^S$ umzurechnen. Hierbei ist $\boldsymbol{\epsilon}_0 = \epsilon_0 \boldsymbol{I}$ der Permittivitätstensor des Vakuums, der keine Vorzugsrichtung aufweist und somit isotrop aus der skalaren elektrischen Feldkonstante ϵ_0 aufgebaut wird. Der Tensor $\boldsymbol{\kappa}^T$ steht für den Permittivitätstensor des Materials.

2.4 Finite-Elemente-Formulierungen

Zur Simulation des elektromechanisch gekoppelten Materialverhaltens der Piezo- und Ferroelektrizität im Rahmen der Finite-Elemente-Methode (FEM) werden in der vorliegenden Arbeit zwei unterschiedliche gemischte Finite-Elemente-Formulierungen verwendet. Diese verwenden beide die Verschiebung $\vec{u}$, das elektrische Potential φ sowie die dielektrische Verschiebung $\vec{D}$ als primäre Variablen. Dadurch können die Simulationen schneller und numerisch stabiler als mit der konventionellen Elementformulierung [74], die lediglich $\vec{u}$ und φ als primäre Variablen verwendet, durchgeführt werden. Der Zuwachs an numerischer Stabilität der gemischten Formulierungen liegt in

der mathematischen Charakteristik des zu lösenden Problems. Mit der konventionellen Formulierung muss ein Sattelpunktproblem, mit der gemischten Formulierung ein Minimierungsproblem gelöst werden. Ein weiterer Vorteil der gemischten Formulierungen ist, dass die dielektrische Verschiebung, eine wichtige Größe im später vorgestellten ferroelektrischen Materialmodell, als iterierte primäre Variable zum aktuellen Berechnungszeitpunkt zur Verfügung steht. In den gemischten Formulierungen stimmt das elektrische Feld nach Gl. (2.50) nur im schwachen (räumlichen) Mittel mit dem negativen Gradienten des Potentials nach Gl. (2.16) überein. Daher wird Gl. (2.16) zu

$$\vec{E}_{grad} = -\operatorname{grad}(\varphi) \tag{2.60}$$

redefiniert.

Unter Berücksichtigung der Leitfähigkeit wird die Formulierung

$$\int_V \boldsymbol{T} : \delta \boldsymbol{S} \, \mathrm{d}V - \int_V \vec{f}^B \cdot \delta \vec{u} \, \mathrm{d}V - \int_{S_f} \vec{f}^{S_f} \cdot \delta \vec{u}^{S_f} \, \mathrm{d}S_f = 0 \tag{2.61}$$

$$\int_V \left(\vec{E} + \operatorname{grad}(\varphi)\right) \cdot \delta \vec{D} \, \mathrm{d}V = 0 \tag{2.62}$$

$$-\int_V \left(\frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{J}\right) \cdot \operatorname{grad}(\delta\varphi) \, \mathrm{d}V + \int_{S_q} J^{S_q} \cdot \delta\varphi^{S_q} \, \mathrm{d}S = 0, \tag{2.63}$$

verwendet, unter Vernachlässigung der Leitfähigkeit die Formulierung

$$\int_V \boldsymbol{T} : \delta \boldsymbol{S} \, \mathrm{d}V - \int_V \vec{f}^B \cdot \delta \vec{u} \, \mathrm{d}V - \int_{S_f} \vec{f}^{S_f} \cdot \delta \vec{u}^{S_f} \, \mathrm{d}S_f = 0 \tag{2.64}$$

$$\int_V \left(\vec{E} + \operatorname{grad}(\varphi)\right) \cdot \delta \vec{D} \, \mathrm{d}V = 0 \tag{2.65}$$

$$\int_V \vec{D} \cdot \operatorname{grad}(\delta\varphi) \, \mathrm{d}V + \int_V q^F \cdot \delta\varphi \, \mathrm{d}V + \int_{S_q} q^{S_q} \cdot \delta\varphi^{S_q} \, \mathrm{d}S_q = 0. \tag{2.66}$$

Die Herleitungen dieser Formulierungen sind in [73, 75, 76] zu finden. In den Gleichungen (2.61) - (2.66) steht V für das Volumen, S_f und S_q für die Oberflächen, auf denen die Oberflächenkräfte $\vec{f}^{S_f}$ und die Oberflächenladung q^{S_q}

wirkt. $\delta\vec{u}$, $\delta\varphi$, $\delta\vec{D}$ sind die zugehörigen Testfunktionen. Der symmetrische Gradient von $\delta\vec{u}$ berechnet sich zu $\delta\boldsymbol{S} = \frac{1}{2}\left(\text{grad}(\delta\vec{u}) + (\text{grad}(\delta\vec{u}))^{\mathsf{T}}\right)$, analog zu Gl. (2.20). $\delta\vec{u}^{S_f}$ und $\delta\varphi^{S_q}$ sind die zugehörigen Testfunktionen auf der Oberfläche. In dieser Arbeit wird das kommerzielle Finite-Elemente-Programm COMSOL Multiphysics™ verwendet. Der Vorteil dieses Programms ist, dass lediglich die schwache Form des gekoppelten Problems benötigt wird. Die Tangentialsteifigkeitsmatrizen werden durch numerische Verfahren generiert. Daher wird an dieser Stelle auf die weitere Umsetzung der Finite-Elemente-Formulierungen verzichtet. Dies wird jedoch in den genannten Quellen für die dort programmierten eigenen Codes umfangreich dokumentiert und diskutiert.

2.5 Vektor-Matrix-Notation nach Voigt

Zur vereinfachten Berechnung der Vektor- und Tensormultiplikationen bei der Implementierung und zur Reduzierung des Speicherbedarfs werden der Verzerrungstensor $\boldsymbol{S}$, der mechanische Spannungstensor $\boldsymbol{T}$, der piezoelektrische Tensor $\mathbb{d}$ und der Steifigkeitstensor $\mathbb{C}$ sowie alle davon abhängigen Größen in die nach *Woldemar Voigt* (1850 - 1919) benannte Voigt-Notation (Vektor-Matrix-Notation) überführt. Dadurch können die zu speichernden Komponenten durch Entfernen der symmetriebedingten redundanten Einträge reduziert werden. Für Tensoren zweiter Stufe reduzieren sich die Komponenten von neun auf sechs, für Tensoren dritter Stufe von 27 auf 18 und für Tensoren vierter Stufe von 81 auf 36. Für die Umrechnung der Indices gilt allgemein $\alpha \leftrightarrow ij$ und $\beta \leftrightarrow kl$. Somit ergibt sich: $1 \leftrightarrow 11$, $2 \leftrightarrow 22$, $3 \leftrightarrow 33$, $4 \leftrightarrow 23$, $5 \leftrightarrow 13$ und $6 \leftrightarrow 12$.

Für den Verzerrungstensor folgt die Transformation

$$\boldsymbol{S} = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} \\ S_{12} & S_{22} & S_{23} \\ S_{13} & S_{23} & S_{33} \end{bmatrix} \Longleftrightarrow \boldsymbol{S}^V = \begin{bmatrix} S_1 & S_2 & S_3 & S_4 & S_5 & S_6 \end{bmatrix}^\mathsf{T} \tag{2.67}$$

mit der Umrechnung der Komponenten, $S_1 = S_{11}$, $S_2 = S_{22}$, $S_3 = S_{33}$, $S_4 = 2S_{23}$, $S_5 = 2S_{13}$ und $S_6 = 2S_{12}$. Der Faktor 2 wird benötigt, um bei der Bildung der inneren mechanischen Energie in der Voigt-Notation wie auch in der herkömmlichen Notation die gleichen Werte zu erhalten. Auch bei der Berechnung der Frobeniusnorm des Verzerrungstensors muss dieser Faktor beachtet werden.

Der Spannungstensor

$$\boldsymbol{T} = \begin{bmatrix} T_{11} & T_{12} & T_{13} \\ T_{12} & T_{22} & T_{23} \\ T_{13} & T_{23} & T_{33} \end{bmatrix} \Longleftrightarrow \boldsymbol{T}^V = \begin{bmatrix} T_1 & T_2 & T_3 & T_4 & T_5 & T_6 \end{bmatrix}^\mathsf{T} \tag{2.68}$$

wird analog mit der Umrechnung, $T_1 = T_{11}$, $T_2 = T_{22}$, $T_3 = T_{33}$, $T_4 = T_{23}$, $T_5 = T_{13}$ und $T_6 = T_{12}$ überführt, jedoch ohne einen zusätzlichen Faktor.

Die Tensoren dritter und vierter Stufe können nur in der Voigt-Notation in einer zweidimensionalen Matrix-Form dargestellt werden. Der piezoelektrische Tensor $\mathbb{d}$ stellt sich in der Voigt-Notation zu

$$\mathbb{d}^V = \begin{bmatrix} d_{11} & d_{21} & d_{31} & d_{41} & d_{51} & d_{61} \\ d_{12} & d_{22} & d_{32} & d_{42} & d_{52} & d_{62} \\ d_{13} & d_{22} & d_{33} & d_{43} & d_{53} & d_{63} \end{bmatrix} \tag{2.69}$$

dar. Für die Umrechnung gilt $d_{\alpha k} = d_{ijk}$, $d_{11} = d_{111}$, $d_{21} = d_{221}$, $d_{31} = d_{331}$, $d_{41} = 2d_{231}$, $d_{51} = 2d_{131}$, $d_{61} = 2d_{121}$, …, $d_{63} = 2d_{123}$. Auch hier stammt der

Faktor 2 aus energetischen Überlegungen. Der Steifigkeitstensor vierter Stufe $\mathbb{C}$ stellt sich in der Voigt-Notation zu

$$\mathbb{C}^V = \begin{bmatrix} c_{11} & c_{21} & c_{31} & c_{41} & c_{51} & c_{61} \\ c_{12} & c_{22} & c_{32} & c_{42} & c_{52} & c_{62} \\ c_{13} & c_{23} & c_{33} & c_{43} & c_{53} & c_{63} \\ c_{14} & c_{24} & c_{34} & c_{44} & c_{54} & c_{64} \\ c_{15} & c_{25} & c_{35} & c_{45} & c_{55} & c_{65} \\ c_{16} & c_{26} & c_{36} & c_{46} & c_{56} & c_{66} \end{bmatrix} \tag{2.70}$$

dar. Für dessen Umrechnung gilt allgemein $c_{\alpha\beta} = c_{ijkl}$.

Tabelle 2.1: Äquivalente piezoelektrische Gleichungen

unabhängige Variablen	piezoelektrische Gleichungen	
$(\boldsymbol{S}, \vec{P})$	$\begin{cases} \boldsymbol{T} = \mathbb{C}^P : \boldsymbol{S} - \mathbb{a} \cdot \vec{P} \\ \vec{E} = -\mathbb{a}^\mathsf{T} : \boldsymbol{S} + \boldsymbol{\chi}^S \cdot \vec{P} \end{cases}$	Helmholtz-Energie
$(\boldsymbol{T}, \vec{E})$	$\begin{cases} \boldsymbol{S} = \mathbb{S}^E : \boldsymbol{T} + \mathbb{d} \cdot \vec{E} \\ \vec{P} = \mathbb{d}^\mathsf{T} : \boldsymbol{T} + \boldsymbol{\kappa}^T \cdot \vec{E} \end{cases}$	Gibbs-Energie
$(\boldsymbol{T}, \vec{P})$	$\begin{cases} \boldsymbol{S} = \mathbb{S}^P : \boldsymbol{T} + \mathbb{b} \cdot \vec{P} \\ \vec{E} = -\mathbb{b}^\mathsf{T} : \boldsymbol{T} + \boldsymbol{\chi}^T \cdot \vec{P} \end{cases}$	Elastische Gibbs-Energie
$(\boldsymbol{S}, \vec{E})$	$\begin{cases} \boldsymbol{T} = \mathbb{C}^E : \boldsymbol{S} - \mathbb{e} \cdot \vec{E} \\ \vec{P} = \mathbb{e}^\mathsf{T} : \boldsymbol{S} + \boldsymbol{\kappa}^S \cdot \vec{E} \end{cases}$	Elektrische Gibbs-Energie
$(\boldsymbol{S}, \vec{D})$	$\begin{cases} \boldsymbol{T} = \mathbb{C}^D : \boldsymbol{S} - \mathbb{h} \cdot \vec{D} \\ \vec{E} = -\mathbb{h}^\mathsf{T} : \boldsymbol{S} + \boldsymbol{\beta}^S \cdot \vec{D} \end{cases}$	h-Form
$(\boldsymbol{T}, \vec{E})$	$\begin{cases} \boldsymbol{S} = \mathbb{S}^E : \boldsymbol{T} + \mathbb{d} \cdot \vec{E} \\ \vec{D} = \mathbb{d}^\mathsf{T} : \boldsymbol{T} + \boldsymbol{\epsilon}^T \cdot \vec{E} \end{cases}$	d-Form
$(\boldsymbol{T}, \vec{D})$	$\begin{cases} \boldsymbol{S} = \mathbb{S}^D : \boldsymbol{T} + \mathbb{g} \cdot \vec{D} \\ \vec{E} = -\mathbb{g}^\mathsf{T} : \boldsymbol{T} + \boldsymbol{\beta}^T \cdot \vec{D} \end{cases}$	g-Form
$(\boldsymbol{S}, \vec{E})$	$\begin{cases} \boldsymbol{T} = \mathbb{C}^E : \boldsymbol{S} - \mathbb{e} \cdot \vec{E} \\ \vec{D} = \mathbb{e}^\mathsf{T} : \boldsymbol{S} + \boldsymbol{\epsilon}^S \cdot \vec{E} \end{cases}$	e-Form

3 Herstellung und experimentelle Untersuchung von bleifreien Relaxoren und Kompositen

In diesem Kaptiel wird die Herstellung zweier bleifreier, $Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$ (NBT) basierter Relaxormaterialien und die Methodik zur Durchführung von Experimenten mit elektrischer und mechanischer Belastung vorgestellt. Im Anschluss daran werden Zweilagenkomposite (Typ 2-2 nach *R.E. Newnham* [30]) bestehend aus diesen Materialien untersucht. Materialentwicklung, Herstellung, Probenpräparation und Experimente, über die in diesem Kapitel berichtet wird, wurden am Institut für Glas und Keramik der Friedrich-Alexander-Universität (FAU) Erlangen-Nürnberg von der Forschungsgruppe von Prof. Kyle G. Webber durchgeführt. In [77] ist dies für die beiden Materialien und in [78] für daraus zusammengesetzte Zweilagenkomposite dokumentiert. Bei den untersuchten Materialien handelt es sich um den nichtergodischen Relaxor NBT-6BT sowie um den ergodischen Relaxor NBT-6BT-4KNN, deren chemische Formeln in Tab. 3.1 aufgeführt sind.

Tabelle 3.1: Chemische Formeln

$0.94Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$-$0.06BaTiO_3$	(NBT-6BT)
$0.90Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$-$0.06BaTiO_3$-$0.04K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$	(NBT-6BT-4KNN)

Der bedeutendste Unterschied zwischen den beiden Materialien liegt hierbei in der Stabilität der ferroelektrischen Phase unter aufgebrachter elektrischer Belastung, welche den makroskopischen Zusammenhang zwischen Polarisation und elektrischem Feld signifikant beeinflusst. In einem ergodischen Relaxor ist die durch ein externes elektrisches Feld erzeugte ferroelektrische Phase instabil. Nach der elektrischen Entlastung bildet sich diese je nach Material unterschiedlich stark in einen ungeordneten relaxorischen Zustand zurück und die verbleibende (remanente) Polarisation reduziert sich dementsprechend. Dagegen bildet ein nichtergodischer Relaxor bei einer Belastung über dem elektrischen Übergangsfeld (engl. *transition field*) E^t, eine irreversible ferroelektrische Struktur mit hoher remanenter Polarisation, die das Material im Wesentlichen zu einem Ferroelektrikum macht. Zur sprachlichen Vereinfachung wird nachfolgend der nichtergodische Relaxor NBT-6BT als Ferroelektrikum (FE) und der ergodische Relaxor NBT-6BT-4KNN als Relaxor (RE) bezeichnet.

3.1 Chemische Zusammensetzungen und Herstellung der Komponenten

Aus den pulverförmigen Ausgangsmaterialien der Firma Alfa Aesar (Karlsruhe, Deutschland) wurden polykristalline Proben von NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN über eine Mischoxid-Route (engl. *mixed-oxide route*) synthetisiert. Die Ausgangsmaterialien und deren Reinheitsgrade sind in Tab. 3.2 aufgeführt.

Die Ausgangsmaterialien wurden in den stöchiometrischen Zusammensetzungen für 24 h in einer Kugelmühle auf die erforderliche Partikelgröße gemahlen und anschließend zweistufig bei 900 °C für 3 h kalziniert. Nach Abkühlung auf Raumtemperatur wurden aus den Pulvergemischen Pulverpresslinge durch isostatisches Pressen mit $-180\,\mathrm{N/mm^2}$ erstellt. Diese wurden anschließend mit einer Heizrate von 5 K/min unter Verwendung von Opfermaterial

Tabelle 3.2: Ausgangsmaterialien

Material	Formel	Reinheit
Bismut(III)-oxid	Bi_2O_3	99.975 %
Titan(IV)-oxid	TiO_2	99.600 %
Natriumcarbonat	Na_2CO_3	99.950 %
Kaliumcarbonat	K_2CO_3	99.950 %
Niob(V)-oxid	Nb_2O_5	99.950 %
Bariumcarbonat	$BaCO_3$	99.950 %

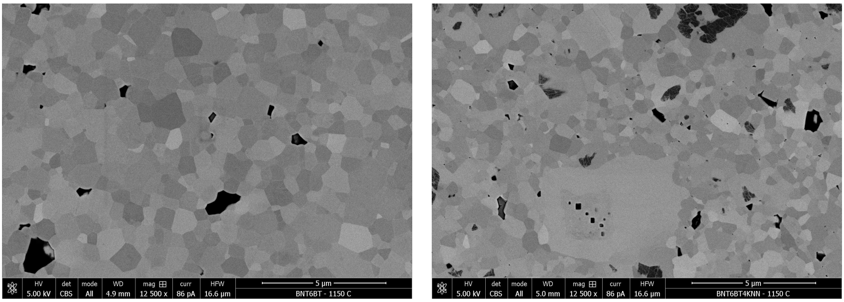


Abbildung 3.1: REM Aufnahmen der Mikrostruktur von NBT-6BT (links) und NBT-6BT-4KNN (rechts). Aufgenommen von K.G. Webber *et al.*, unveröffentlicht.

derselben Zusammensetzung bei 1150 °C für 3 h gesintert. Die daraus entstandenen polykristallinen Proben haben eine homogene Mikrostruktur mit einer relativen Dichte von ≥ 96 %. Die im Rasterelektronenmikroskop (REM) aufgenommenen Mikrostrukturen der beide Werkstoffe sind in Abb. 3.1 dargestellt. Dazu wurden die Proben mit Hilfe einer kolloidalen Silica- (SiO_2) Suspension poliert. In den Aufnahmen beschreiben die unterschiedlichen Graustufen die Orientierung der Körner. Die schwarzen Bereiche stellen Poren oder Verunreinigungen dar. In NBT-6BT ist eine in etwa homogene Korngrößenverteilung zu erkennen. Die durchschnittliche Korngröße beträgt ca. 0.57 µm. In NBT-6BT-4KNN ist eine deutlich heterogenere Korngrößenverteilung mit einer Tendenz

zum extremen Kornwachstum zu beobachten. Die durchschnittliche Korngröße beträgt ca. 0.48 µm. Es sind aber Körner bis zur Größe von 5 µm und damit in etwa der zehnfachen durchschnittlichen Korngröße zu beobachten.

3.2 Experimentelle Methodik

Für die elektrisch belasteten Experimente wurden würfelförmige Proben zugeschnitten und auf die finale Kantenlänge von 4 mm geschliffen. Auf zwei gegenüberliegenden Seiten wurden Gold- (Au) Elektroden mit Hilfe von Sputterdeposition aufgetragen. Die bipolare elektrische Belastung von ±4 kV/mm wurde für eineinhalb bzw. zwei Zyklen mit einer Rate von 1.6 kV/(mm s) bzw. mit einer Frequenz von 100 mHz mit einem Hochspannungsverstärker (Trek 20/20) bei Raumtemperatur aufgebracht. Zur Vermeidung von Lichtbögen wurden die Proben während der Belastung in Silikonöl gelagert. Das makroskopische Dehnungsverhalten wurde mit einem speziell angepassten System zur digitalen Bildkorrelation (engl. *Digital Image Correlation*, DIC) und als Referenz zusätzlich mit einem linearen Wegaufnehmer (engl. *linear variable differential transformer*, LVDT) aufgezeichnet. Die Polarisation wurde mit einem Sawyer-Tower Schaltkreis erfasst. Das DIC-System war mit einer zweifach Vergrößerungslinse (MVO-TML telecentric measuring lens, Edmund Optics Inc.) ausgestattet, die eine Auflösung von 1.75 µm/pixel bereitstellt. Da die Oberflächen der Prüfkörper ein für die DIC-Methode zu kontrastarmes Erscheinungsbild aufweisen, wurden künstliche Sprenkel mit Hilfe einer Spritzpistole (AT-Airbrush Pistole Kit, AT-AK-02, Agora-Tec) aufgetragen. Während der Belastung wurden von der Kamera zwei Bilder pro Sekunde aufgenommen. Diese Bilder wurden mit der kommerziellen DIC-Software Veddac ausgewertet. Dabei haben die Messpunkte einen Abstand zueinander von 60 pixel bzw. 105 µm. Um das Verschiebungsfeld aufzuzeichnen wurde ein Referenzfeld der

Größe 120 × 120 pixel gewählt. Um die Genauigkeit zu erhöhen und die Standardabweichung zu minimieren, wurde zwischen den Messpunkten zusätzlich die *Haar-Wavelet-Funktion* [79] verwendet. Die in Bezug auf die Belastungsrichtung longitudinalen und transversalen globalen Dehnungen wurden durch Mittelwertbildung über den gesamten Betrachtungsbereich errechnet. Das Rauschen betrug 0.04 pixel bzw. ca. 0.002 % und lag damit weit unterhalb der gemessenen Signale. Weitere Details zur DIC-Methode und zum Setup für ferroelektrische Werkstoffe können z.B. [50] entnommen werden.

Die mechanisch belasteten einachsialen Druckversuche wurden mit zylindrischen Proben mit einer Höhe von 6 mm und einem Durchmesser von 5.8 mm durchgeführt. Die mechanische Spannung wurde gesteuert und die globale Dehnung mit einem linearen Wegaufnehmer (LVDT) erfasst. Der vollständige Versuchsaufbau wird in [80] ausführlich beschrieben. Um den mechanischen Kontakt des LVDT sicherzustellen, wurde eine Vorspannung von $-3.8\,\mathrm{N/mm^2}$ durch einer Feder aufgebracht. Die Proben wurden anschließend mit einer Belastungsrate von $5\,\mathrm{N/(mm^2\,s)}$ bzw. mit einer Belastungsfrequenz 0.5 mHz auf $-500\,\mathrm{N/mm^2}$ einmalig be- und entlastet.

3.3 Elektrische und mechanische Belastung der Materialien

Die experimentell gemessenen makroskopischen ferroelektrischen und ferroelastischen Antworten der ungepolten Materialien NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN sind in Abb. 3.2 dargestellt. Zunächst wird auf die linke Spalte mit dem Material NBT-6BT eingegangen. In der ferroelektrischen $P-E$-Hysterese, in der die Polarisation über dem elektrischen Feld aufgetragen ist, steigt die Polarisation zunächst moderat, mit steigendem elektrischen Feld jedoch progressiv zunehmend an. Bei Erreichen von ca. 2.4 kV/mm ist eine sprunghafte Zunahme der Polarisation zu erkennen. Bei weiterer Steigerung des elektrischen

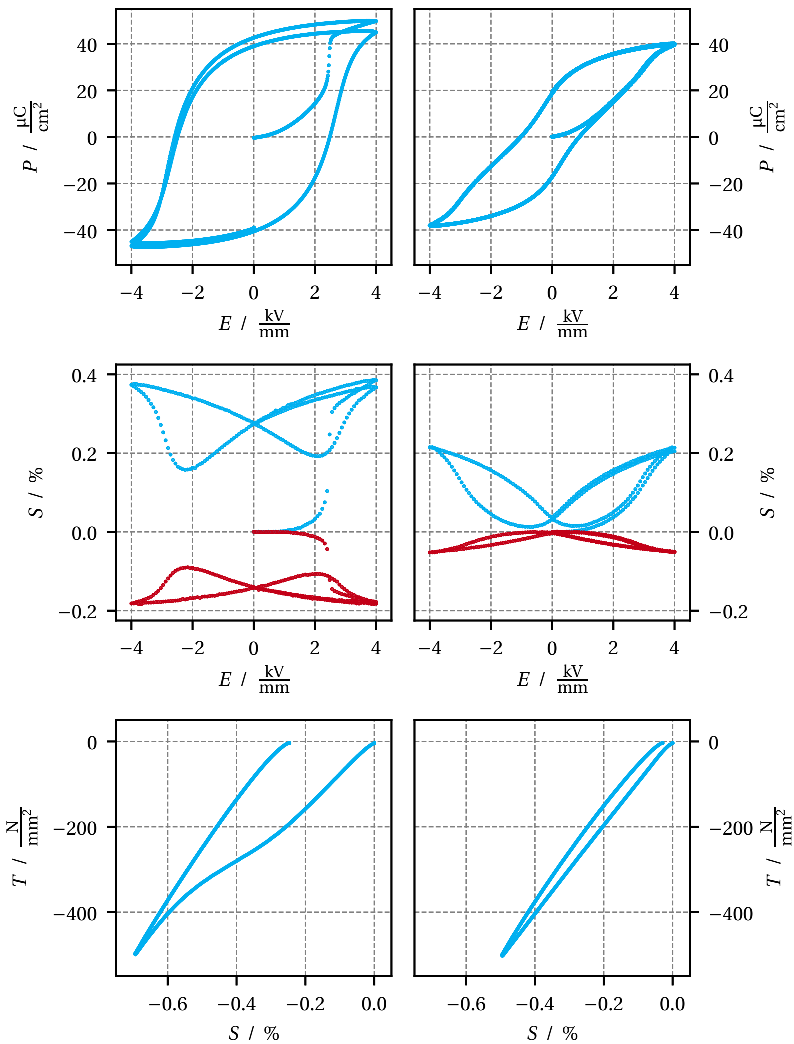


Abbildung 3.2: Experimentell ermittelte $P_3 - E_3$-, $S_3 - E_3$- und $S_1 - E_3$- sowie $T_3 - S_3$-Hysteresen von NBT-6BT (links) und NBT-6BT-4KNN (rechts).

Feldes ändert sich die Krümmungsrichtung und die Polarisation nimmt nur noch regressiv steigend bis zum Erreichen des Maximums von ca. 50 µC/cm^2 zu. Bei der Reduzierung des elektrischen Feldes nimmt die Polarisation zunächst annähernd linear ab, beträgt bei 0 kV/mm ca. 42 µC/cm^2 und nimmt bei Erreichen des negativen elektrischen Feldes deutlich nichtlinear ab. Bei ca. −3.0 kV/mm wechselt die Krümmungsrichtung erneut und es kommt zu einer immer langsameren Abnahme der Polarisation. Nach Erreichen der minimalen Belastung beträgt die Polarisation ca. −47 µC/cm^2. Mit wieder steigendem elektrischem Feld nimmt die Polarisation erst linear und dann deutlich progressiv steigend zu, bis die Krümmungrichtung bei ca. 3.0 kV/mm wieder wechselt. Bei erneutem Erreichen der maximalen Belastung beträgt die Polarisation ca. 45 µC/cm^2 und ist im Vergleich zur Erstbelastung etwas geringer. Auch die Steigung bei der zweiten Entlastung ist etwas flacher. Bei 0 kV/mm liegt die Polarisation mit ca. 39 µC/cm^2 etwas unter dem ersten Halbzyklus. Im Weiteren verhält sich die Hysterese nahezu punktsymmetrisch zum Ursprung. Es ist ein deutlicher Unterschied zwischen der Neukurve und der Wiederbelastung zu erkennen. Die Minimal- und Maximalwerte der Polarisation unterscheiden sich nach dem ersten Halbzyklus kaum voneinander.

In der $S-E$-Schmetterlingshysterese sind die Dehnungskomponenten parallel (blau) und quer (rot) zur elektrischen Belastungsrichtung über dem elektrischen Feld aufgetragen. Die parallele Dehnungskomponente S_3 bzw. $S_\parallel$ ändert sich zunächst mit dem steigenden elektrischen Feld nicht. Ab ca. 1.5 kV/mm ist ein in etwa linearer, dann progressiv steigender Verlauf zu erkennen. Bei ca. 2.4 kV/mm ist, wie bereits bei der Polarisation, eine nahezu sprunghafte Zunahme der Dehnung zu erkennen. Bei weiterer Steigerung ändert sich die Krümmungsrichtung und ein linearer Verlauf ist zu erkennen. Bei der maximalen elektrischen Belastung wird eine Dehnung von ca. 0.39 % erreicht. Wird die Belastung nun verringert, ist ein annähernd linearer Verlauf zu erkennen. Bei 0 kV/mm verbleibt eine Dehnung von ca. 0.27 %. Bei der weiteren Reduzierung der Belastung sinkt die Dehnung annähernd linear ab, bevor sie bei ca. −2.2 kV/mm ein lokales Minimum von etwa 0.16 % annimmt und danach wieder deutlich steigend bei minimaler elektrischer Belastung eine Dehnung

von ca. 0.37 % aufweist. Es folgt ein in etwa linearer Verlauf, bei 0 kV/mm wird wie zuvor derselbe Wert der Dehnung erreicht. Bei ca. 2.2 kV/mm folgt erneut ein lokales Minimum von etwa 0.19 %. Die Dehnung verhält sich in etwa spiegelsymmetrisch, wobei sich die Extremwerte leicht unterscheiden. Die Dehnungskomponente S_1 bzw. $S_\perp$ quer zur Belastungsrichtung zeigt ein vergleichbares Verhalten, jedoch mit entgegengesetztem Vorzeichen und kleineren Beträgen. Die bei der Entlastung verbleibende Dehnung in Querrichtung beträgt ca. −0.15 %. Analog zur ferroelektrischen Hysterese ist für beide Dehnungskomponenten ein deutlicher Unterschied zwischen der Neukurve und der Hysterese zu erkennen. Bei der ersten Belastung werden Dehnungen verursacht, die bei weiterer zyklischer Belastung unabhängig vom elektrischen Feld im Material verbleiben. Es liegt kein rein deviatorischer Dehnungszustand vor, denn z.B. die verbleibenden Dehnungen weichen mit $S_\perp(E=0)/S_\parallel(E=0) = -0.15\%/0.27\% = -0.56$ vom theoretischen Verhältnis für deviatorische Dehnungen von $S_\perp/S_\parallel = -0.5$ ab.

Die ferroelastische $T-S$ Neukurve, die Auftragung der aufgebrachten mechanischen Spannung über der Dehnungkomponente in Belastungsrichtung, weist einen in etwa linearen, minimal S-förmigen Verlauf auf, wobei die Steigung kurz vor Erreichen der Belastung von −500 N/mm^2 etwas zunimmt. Die maximale Dehnung beträgt dabei 0.69 %. Bei der Entlastung bleibt die Steigung annähernd konstant. Bei vollständiger Entlastung verbleibt eine Dehnung von ca. 0.25 %, die betragsmäßig der verbleibenden Dehnung nach der elektrischen Belastung entspricht. Wie bereits erwähnt, kann aufgrund der Sprödigkeit nur der Druckbereich der ferroelastischen Hysterese untersucht werden.

Nun wird auf die rechte Spalte von Abb. 3.2 eingegangen. In der ferroelektrischen $P-E$-Hysterese von NBT-6BT-4KNN steigt die Polarisation nach anfänglicher progressiver Zunahme annähernd linear bis zum Erreichen der maximalen elektrischen Belastung mit einem Wert von ca. 40 µC/cm^2. Bei der Entlastung verhält sich die Polarisation anfangs linear, dann deutlich nichtlinear. Mit Erreichen von 0 kV/mm beträgt die Polarisation ca. 19 µC/cm^2, zeigt

bei weiter sinkender Belastung einen minimal S-förmigen Verlauf und bei Erreichen des minimalen elektrischen Feldes einen Wert von ca. $-38\,\mu C/cm^2$. Bei der Steigerung der Belastung entsteht eine im Ursprung punktsymmetrische Hysterese. Die Form der Hysterese wird als eingeschnürt (engl. *pinched*) bezeichnet. Es ist kein nennenswerter Unterschied zwischen der Neukurve und der nachfolgenden Hysterese zu erkennen. Ebenso weisen die minimale und maximale Polarisation in etwa dieselben Beträge auf.

Die $S-E$-Schmetterlingshysterese für die Dehnungskomponente parallel (blau) zur Belastungsrichtung zeigt bei der Erstbelastung ein moderates nichtlineares Verhalten ohne sprunghaften Anstieg und erreicht bei maximaler Belastung eine Dehnung von ca. 0.21 %. Beim nachfolgenden Verringern der Belastung reduziert sich die Dehnung annähernd linear, erreicht bei $0\,kV/mm$ einen Wert von ca. 0.031 %, bei $-0.7\,kV/mm$ das lokale Minimum von 0.01 % und steigt dann nichtlinear bis zum Erreichen der minimalen Belastung auf 0.21 % an. Im Weiteren verhält sich die Dehnungshysterese in etwa spiegelsymmetrisch. Gleiches gilt für die Dehnungskomponente quer (rot) zur Belastungsrichtung, jedoch mit entgegengesetzten Vorzeichen und kleineren Beträgen. Bei betragsmäßig kleinen elektrischen Feldern ist nahezu keine Querdehnung vorhanden. Die ferroelastische $T-S$ Neukurve verhält sich bei der Belastung de facto linear und erreicht bei $-500\,N/mm^2$ einen Wert von 0.49 %. Bei der Entlastung ist eine minimale Änderung der Steigung zu erkennen und es verbleibt eine Dehnung von ca. 0.03 %.

Beim Vergleich der beiden Materialien zeigen sich deutlich deren unterschiedliche Charakteristika. Der nichtergodische Relaxor NBT-6BT weist eine bauchige, der ergodische Relaxor NBT-6BT-4KNN hingegen, bedingt durch die instabile ferroelektrische Phase, eine eingeschnürte $P-E$-Hysterese auf. Während NBT-6BT einen deutlichen Unterschied zwischen Erst- und Folgebelastung aufzeigt, ist für NBT-6BT-4KNN nahezu kein Unterschied zu erkennen. Die $S-E$-Hysteresen unterscheiden sich deutlich. Die in NBT-6BT nach der elektrischen Belastung verbleibende Dehnung übersteigt sogar die in NBT-6BT-4KNN unter maximaler Belastung erreichten Werte deutlich. Auch in der

$T-S$-Hysterese sind die Dehnungen unter Belastung sowie die nach Entlastung verbleibenden Dehnungen von NBT-6BT betragsmäßig deutlich höher als bei NBT-6BT-4KNN. Gemeinsam haben beide Materialien lediglich, dass die elektrische Belastung nichtdeviatorische Dehnungszustände und somit Volumenänderungen verursacht.

Die Resultate in Abb. 3.2 stehen mit Publikationen im Einklang, in denen eine Reduktion der remanenten Polarisation und der Dehnung mit zunehmenden KNN Gehalt in NBT-6BT-xKNN beschrieben wird [81]. Die Ursache dieses Verhaltens wird in der zunehmenden Destabilisierung der elektrisch induzierten ferroelektrischen Fernordnung gesehen. Eine wichtiger Hinweis auf dieses Verhalten ist der ersichtliche Einschnürungseffekt in der makroskopischen ferroelektrischen Hysterese. Ebenso zeigt die Spannungs-Dehnungsbeziehung für NBT-6BT-4KNN eine deutliche Reduktion der verbleibenden Dehnung. In situ Experimente haben ein vergleichbares mechanisches Verhalten nachgewiesen, bei dem durch extern aufgebrachte mechanische Spannung eine ferroelektrische Ordnung und die Bildung von Domänenstrukturen induziert werden können [82].

3.4 Bestimmung der spezifischen Widerstände

Die beiden untersuchten Materialien gehören zu der Klasse der Nichtleiter. Im Polungsprozess werden sehr hohe elektrische Felder aufgebracht. Dabei finden trotz der sehr hohen spezifischen Widerstände Ladungstransporte statt. Der elektrische Widerstand ist im Allgemeinen von der elektrischen Feldstärke abhängig. Zur Bestimmung der Widerstände wurden beide Materialien nach dem ASTM Standard D257, *Standard Test Methods for DC Resistance or Conductance of Insulating Materials* bestimmt. Dabei wurden diese elektrisch belastet und die auftretenden elektrischen Ströme mit einem TF 2000 E Analyzer (aixACCT Systems, Aachen) aufgezeichnet. Anhand der Probengeometrie können daraus die Widerstände ermittelt werden. Die gemessenen spezifischen

Widerstände für NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN sowie deren Mittelwerte sind in Abb. 3.3 dargestellt. Zu beachten ist die logarithmische Auftragung der Widerstände.

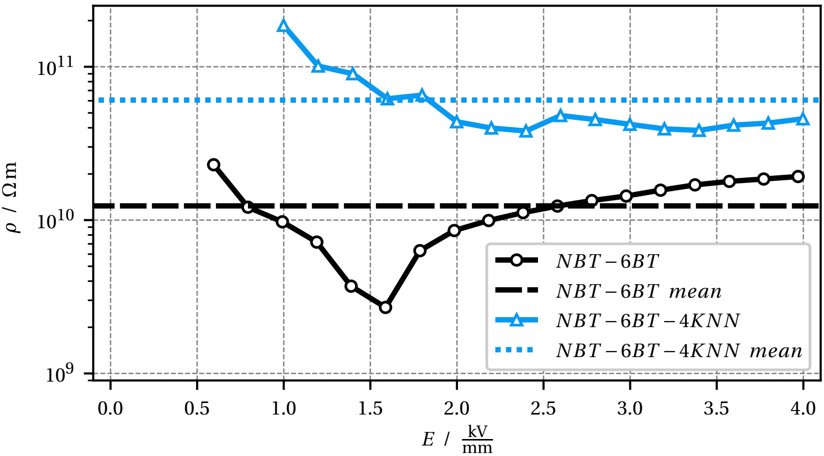


Abbildung 3.3: Experimentell ermittelte spezifische elektrische Widerstände ρ sowie deren arithmetische Mittelwerte für NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN.

Mit steigendem elektischem Feld nimmt der Widerstand in NBT-6BT zunächst deutlich ab, steigt ab ca. 1.6 kV/mm jedoch wieder an und erreicht nahezu wieder den anfangs beobachteten Widerstand. Bei NBT-6BT-4KNN sinkt der Widerstand zunächst mit steigendem elektrischen Feld ebenfalls ab und bleibt bei weiterer Belastung aber in etwa konstant. Insgesamt weist NBT-6BT kleinere Widerstände als NBT-6BT-4KNN auf. Die gemittelten spezifischen Widerstände betragen in NBT-6BT $\rho = 1.24 \cdot 10^{10}\,\Omega\text{m}$ bzw. in NBT-6BT-4KNN $\rho = 6.06 \cdot 10^{10}\,\Omega\text{m}$. Daraus ergeben sich die arithmetisch gemittelten spezifischen Leitwerte $\sigma = 8.08 \cdot 10^{-11}\,\text{S/m}$ bzw. $\sigma = 1.65 \cdot 10^{-11}\,\text{S/m}$.

3.5 Elektrisch belastete Zweilagenkomposite

Wie in [78] ausführlich beschrieben, wurden weiterhin Zweilagenkomposite mit verschiedenen Volumenanteilen elektrisch belastet, um den Einfluss von Polarisationskopplung (engl. *polarisation coupling,* PC) bzw. Polarisations- und Dehnungskopplung (engl. *polarisation and strain coupling,* PSC) zu untersuchen. Dazu wurden die Komponenten in ihrem thermisch depolarisierten Zustand auf die entsprechenden Dicken geschliffen, mit Gold-Elektroden versehen und anschließend so zusammengefügt, dass die Probengeometrie der Komposite – wie bereits bei den reinen Materialien – Würfel der Kantenlänge von 4 mm betrug. Aufgrund von elektrischen Durchschlägen während der Experimente und der begrenzten Anzahl an verfügbaren Proben wurden auch Quader der Abmessungen von 4 x 4 x 3.2 mm und somit mit reduzierter Höhe untersucht. Die Belastung erfolgte rechtwinklig zur Grenzfläche des Komposits. Für den Fall der reinen Polarisationskopplung wurden die Komponenten lediglich aufeinander gelegt und der Kontakt durch eine Vorspannung sichergestellt. Für den Fall der zusätzlichen Dehnungskopplung wurden die Komponenten mit einem elektrisch leitenden Klebstoff mit hohem Anteil an Silber (Ag), *schnelltrocknendes Leitsilber ACHESON 1415* (Plano, Wetzlar), verklebt. Dessen Einsatztemperatur beträgt maximal 100 °C.

3.5.1 Globale P-E- und S-E-Hysteresen des Zweilagenkomposits

Die so produzierten Zweilagenkomposite wurden mit einem bipolaren elektrischen Feld von ±4 kV/mm belastet. Hier werden nun die Komposite mit einem Volumengehalt von 50 % V_{FE} und den unterschiedlichen Kopplungsarten betrachtet. Die globalen $P-E$-Hysteresen für die PC- und PSC-gekoppelten Zweilagenkomposite, dargestellt in Abb. 3.4, sind beide symmetrisch, moderat eingeschnürt und unterscheiden sich nur sehr geringfügig in den Werten

der Polarisation. Für beide Kopplungsarten ist zu erkennen, dass das minimale bzw. das maximal aufgebrachte elektrische Feld nicht zur vollständigen Sättigung der Polarisation ausreicht. Dies ist durch die unterschiedlichen Steigungen vor und nach Erreichen der extremalen Belastungen ersichtlich. Als Referenz sind in Abb. 3.4 ebenfalls die Hysteresen der beiden Materialien NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN dargestellt. Die $P-E$-Hysteresen beider Kopplungsfälle liegen nahe an der Hysterese von NBT-6BT-4KNN, für die extremalen Belastungen jedoch etwas darunter.

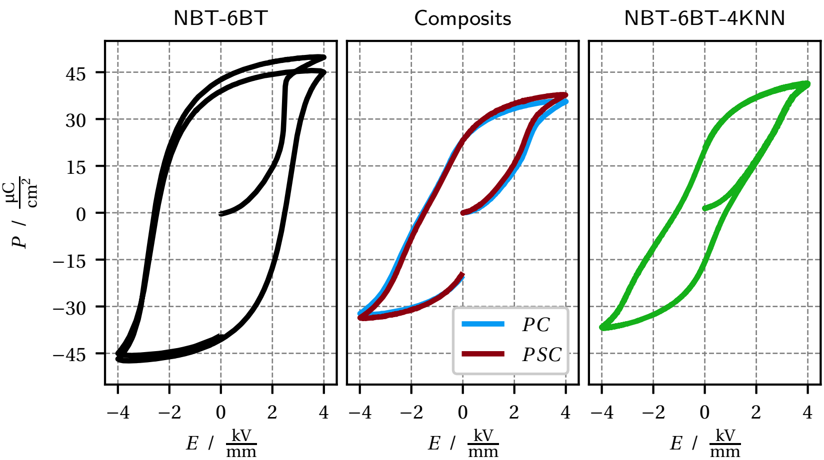


Abbildung 3.4: Experimentell ermittelte globale $P-E$-Hysteresen für PC- und PSC- gekoppelte Zweilagenkomposite mit 50 % V_{FE} sowie für die Ausgangsmaterialien NBT-6BT (FE) und NBT-6BT-4KNN (RE).

Die globalen Dehnungshysteresen mit den Komponenten S_3 parallel und S_1 quer zur Belastungsrichtung des Komposits sind in Abb. 3.5 dargestellt. Auch hier sind die entsprechenden Hysteresen der einzelnen Materialien mit aufgeführt. Im Falle der zusätzlichen Dehnungskopplung werden von Beginn an höhere Dehnungen parallel zur Belastungsrichtung beobachtet. Dabei scheint der Unterschied in den S_3-Dehnungen nur während der ersten Belastung zuzunehmen. Anschließend bleibt die Differenz zwischen beiden Hysteresen in

etwa konstant. Die maximalen Werte von S_3 erreichen ca. 0.21 % (PC) bzw. 0.28 % (PSC) und unterscheiden sich hierdurch deutlich. Der PC-gekoppelte Komposit weist eine in etwa vergleichbare maximale S_3-Dehnung wie das Ausgangsmaterial NBT-6BT-4KNN auf, unterscheidet sich zu diesem jedoch bei der ersten Belastung und der remanenten Dehnung. Der PSC-gekoppelte Komposit weist hingegen eine höhere S_3-Dehnung auf, die jedoch unter dem Mittelwert der S_3-Dehnungen von NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN liegt. Die Dehnungen quer zur Belastungsrichtung verhalten sich für beide Kopplungsarten nahezu identisch und liegen ebenfalls betragsmäßig unter dem Mittelwert der S_1- Dehnungen von NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN. Es bleibt hier die Frage, warum für den PC-gekoppelten Fall im Vergleich zu NBT-6BT-4KNN nur vergleichbare bzw. nur bei kleinen elektrischen Feldern geringfügig höhere Dehnungen erreicht wurden. Eine mögliche Erklärung könnte ein unvollständiger elektrischer Kontakt zwischen den beiden Komponenten an der Grenzfläche sein. Ebenso könnte die elektrische Leitfähigkeit eine Rolle spielen.

3.5.2 Einfluss der Kopplungsart auf die Querdehnung

Anhand von DIC-Auswertungen der Experimente kann der Einfluss der zusätzlichen Dehnungskopplung auf die Querdehnungsverteilung der S_1-Dehnungen entlang der Probenhöhe untersucht werden. Dazu wird die betrachtete Fläche in 28 horizontal ausgerichtete Teilflächen unterteilt. In diesen Teilflächen werden die S_1 Dehnungen über die Fläche gemittelt. Hierbei werden Zweilagenkomposite mit einer reduzierten Probenhöhe von 3.2 mm, mit gleichen Volumenanteilen und der reinen Polarisationskopplung (PC) sowie der Polarisations- und Dehnungskopplung (PSC) für die Zeitpunkte der maximalen Belastung von 4 kV/mm und der anschließenden vollständigen Entlastung untersucht.

In Abb. 3.6 sind die Querdehnungsverteilungen über die Probehöhe sowie deren Mittelwerte für den Zeitpunkt der maximalen Belastung dargestellt. Der

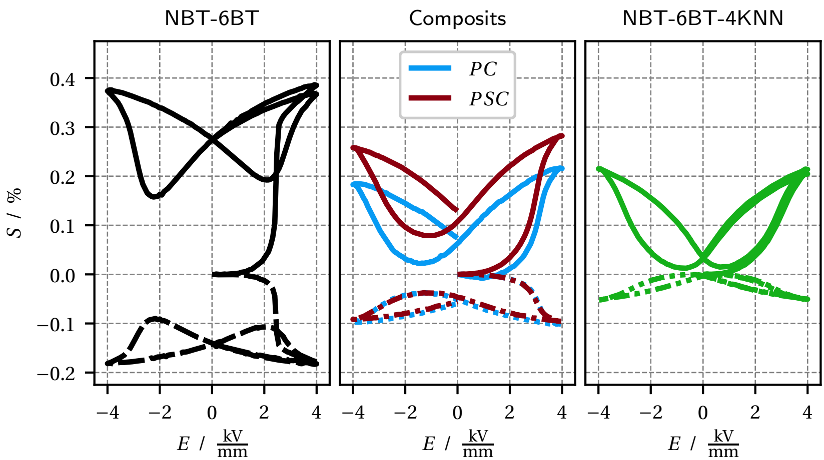


Abbildung 3.5: Experimentell ermittelte globale $S_3 - E$- und $S_1 - E$-Hysteresen (durchgehende bzw. unterbrochene Linien) für PC- und PSC- gekoppelte Zweilagenkomposite mit 50 % V_{FE} sowie für die Ausgangsmaterialien NBT-6BT (FE) und NBT-6BT-4KNN (RE).

PC-gekoppelte Komposit weist in beiden Komponenten eine leicht S-förmige, annähernd konstante Dehnungsverteilung und eine sprunghafte Änderung der Dehnungen an der Grenzfläche auf. Die Dehnungen im unteren und oberen Bereich betragen ca. −0.10 % und −0.066 %. Der Mittelwert der kompletten Fläche des Komposits beträgt in etwa −0.085 %. Der PSC-gekoppelte Komposit weist im unteren Bereich zunächst einen nahezu konstanten, im Bereich der Grenzfläche einen in etwa linearen und im oberen Bereich wieder einen leicht S-förmigen Verlauf der Querdehnung auf. Die Dehnungen im unteren und oberen Bereich betragen ca. −0.12 % und −0.07 %. Für Komposit ergibt sich insgesamt eine gemittelte Dehnung von etwa −0.094 %. Unterschiede zwischen der PC- und PSC-Kopplung machen sich im Hinblick auf die Dehnungen und deren Verteilung hauptsächlich in der unteren Komponente NBT-6BT und im Bereich der Grenzfläche bemerkbar. Hierbei wird für die PSC-Kopplung im unteren Bereich eine Erhöhung der Dehnungswerte von ca. 20 %

beobachtet. In der oberen Komponente ist hingegen nur ein minimaler Unterschied erkennbar. Die Mittelwerte der Dehnungen der gesamten Fläche von −0.085 % (PC) bzw. −0.094 % (PSC) unterscheiden sich um ca. 12 %.

In Abb. 3.7 sind die Querdehnungsverteilungen sowie deren Mittelwerte für den Zeitpunkt der vollständigen Entlastung dargestellt. Da keine weitere äußere Belastung aufgebracht wird, werden die Dehnungen nun als remanente, also verbleibende Dehnungen bezeichnet. Diese können neben den irreversiblen Dehnungsanteilen auch reversible Dehnungsanteile beinhalten, die auf verbleibende interne elektrische Felder und Potentiale zurückzuführen sind. Für die PC-Kopplung wird in den Komponenten jeweils eine nahezu konstante Dehnungsverteilung in der unteren und oberen Lage von −0.063 % und −0.019 % beobachtet. Für den gesamten PC-gekoppelten Komposit ergibt sich eine gemittelte remanente Dehnung von etwa −0.041 %. Für die PSC-Kopplung ergibt sich ein vergleichbarer Verlauf der Dehnungsverteilung. Entfernt von der Grenzfläche ist diese in etwa konstant und beträgt in der unteren

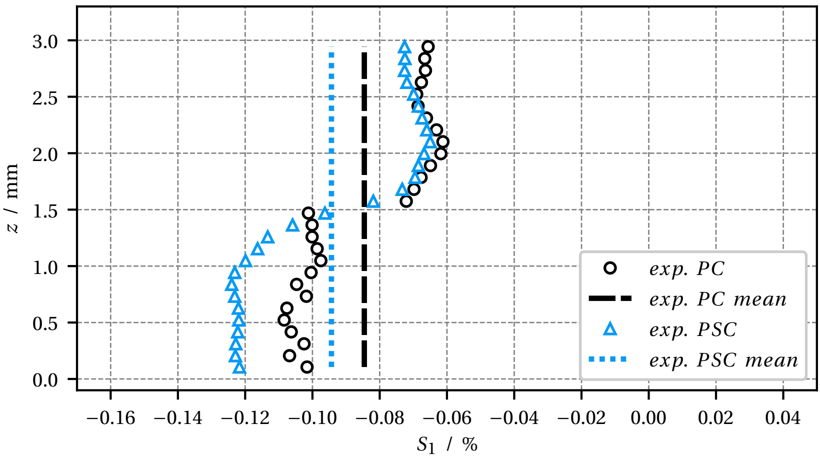


Abbildung 3.6: Mittels DIC ermittelte Querdehnungsverteilungen und Mittelwerte für den PC- und PSC-gekoppelten Zweilagenkomposit bei einer Belastung von 4 kV/mm.

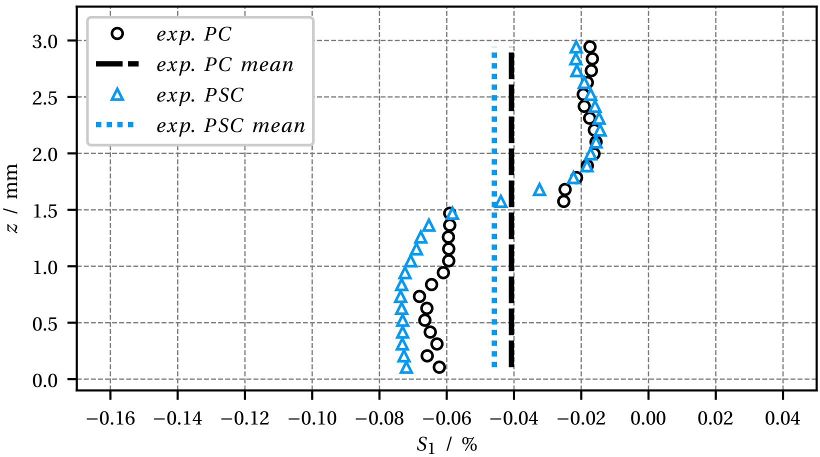


Abbildung 3.7: Mittels DIC ermittelte Querdehnungsverteilungen und Mittelwerte für den PC- und PSC- gekoppelten Zweilagenkomposit nach der Entlastung (0 kV/mm).

und oberen Komponente in etwa−0.071 % und −0.021 %. Lediglich in einem schmalen Bereich der Grenzfläche ist ein linearer Verlauf der Dehnung zu erkennen. Dieser Bereich hat eine Höhe von etwa 0.3 mm. Für den gesamten PSC-gekoppelten Komposit ergibt sich eine gemittelte remanente Dehnung von −0.046 %. Auch hier sind Unterschiede in den Dehnungsverteilungen der PC- und PSC-gekoppelten Komposite nur in den unteren Komponenten und im Bereich der Grenzfläche zu beobachten. Im unteren Bereich beträgt die Erhöhung der Dehnungswerte für den PSC- gekoppelten Komposit 12.5 %. In der oberen Komponente ist hingegen nur ein minimaler Unterschied erkennbar. Die Mittelwerte der Dehnungen des gesamten Komposits liegen von ca. −0.041 % (PC) bzw. −0.046 % (PSC) unterscheiden sich um ca. 12.5 %.

Die bereits angesprochene Mittelwertbildung der in Abb. 3.6 und 3.7 dargestellten diskreten Dehnungsverteilungen führt zu exakt den gleichen Dehnungswerten wie bei der direkten DIC-Auswertung der gesamten Oberfläche.

Das ist daran zu erkennen, dass die gemittelten Werte mit den entsprechenden Werten der $S_1 - E$ Hysteres in Abb. 3.5 zum Zeitpunkt des maximalen elektrischen Feldes bzw. nach dem ersten Halbzyklus übereinstimmen.

Nun werden die Auswirkungen der Kopplungsart auf die Querdehnungen diskutiert. Die obere Komponente NBT-6BT-4KNN erfährt für die betrachteten Zustände unabhängig von der Kopplungsart im Vergleich zum reinen Material deutlich höhere Querdehnungen. In der unteren Komponente NBT-6BT verhält es sich umgekehrt. Dies könnte durch die Polarisationskopplung und der damit verbundenen Verteilung der inneren elektrischen Felder im Komposit verursacht sein. Im Komposit wirken vermutlich auf NBT-6BT-4KNN ein höheres und auf NBT-6BT ein geringeres lokales elektrisches Feld als das vorgegebene externe Feld. Experimentell kann die Verteilung der Felder allerdings nicht ermittelt werden.

Weiterhin ist ersichtlich, dass der elektrisch leitende Kleber nicht in der Lage ist, einen perfekten mechanischen Verbund der beiden Komponenten herzustellen. Dies lässt sich daran erkennen, dass lediglich im Bereich der Grenzfläche eine lineare Verteilung der Querdehnungen vorliegt. Würde der Kleber einen perfekten Verbund erzeugen, so wäre mit einer in etwa linearen Verteilung der Dehnung über die gesamte Probenhöhe zu rechnen.

Auf den ersten Blick scheint die zusätzliche Dehnungskopplung im Komposit eine Erhöhung der remanenten Dehnungen zumindest in der unteren Komponente NBT-6BT zu verursachen. Hier stellt sich die Frage, warum die zusätzliche Dehnungskopplung keinen Einfluss auf die obere Komponente NBT-6BT-4KNN zu haben scheint. Eine mögliche Erklärung wäre, dass der verwendete Kleber vorwiegend den elektrischen Kontakt zwischen den beiden Komponenten verbessert und somit eher als elektrische Leitpaste wirkt. Im Umkehrschluss müsste davon ausgegangen werden, dass bei der reinen Polarisationskopplung durch das unverklebte Aufeinanderlegen der beiden Komponenten nur ein unvollständiger elektrischer Kontakt erreicht werden kann.

Bedenkt man den polykristallinen und leicht porösen Aufbau der beiden keramischen Komponenten, wie er in Abb. 3.1 dargestellt ist, so ist ein unvollständiger elektrischer Kontakt trotz der sorgfältigen Präparation der Proben durch geometrische Imperfektionen an den beide Kontaktflächen möglich. Ebenso könnte das Silikonöl, dass die Durchschlagfestigkeit des Experiments erhöhen soll, durch Kapillareffekte in die Grenzfläche hineingelangen und somit den elektrischen Kontakt zwischen den beiden Komponenten verringern. Leider kann diese Fragestellung mit den vorliegenden experimentellen Daten nicht abschließend bewertet werden. Dazu müssen weitere Experimente an Kompositen mit einer nicht klebenden elektrischen Leitpaste als Referenz durchgeführt werden. Jedoch können auch numerische Simulationen, durch virtuelle Einblicke in die inneren Feldgrößen, erheblich zum Verständnis der Messungen beitragen.

3.5.3 Piezoelektrischer Großsignalkoeffizient für verschiedene Volumenanteile

Wie beeinflusst die volumetrische Zusammensetzung das globale Dehnungsverhalten des Zweilagenkomposits? Diese Fragestellung wird nun anhand des piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten untersucht und diskutiert. Dieser Koeffizient berechnet sich aus dem Quotienten der maximalen abzüglich der remanenten Dehnung nach Entlastung und dem maximal aufgebrachten elektrischen Feld. In Abb. 3.8 ist dies graphisch und in Gl. (3.1) rechnerisch dargestellt:

$$d_{33}^{*} = \frac{S_3(E_{max}) - S_3(E=0)}{E_{max}}. \tag{3.1}$$

Dieser Koeffizient ist eine wichtige Größe für die Anwendung piezo- und ferroelektrischer Aktuatoren, denn dieser beschreibt die Kopplung zwischen der nutzbaren Dehnung parallel zur Belastungsrichtung (hier die 3-Richtung) und dem elektrischen Feld und beinhaltet bereits mögliche Nichtlinearitäten. Je

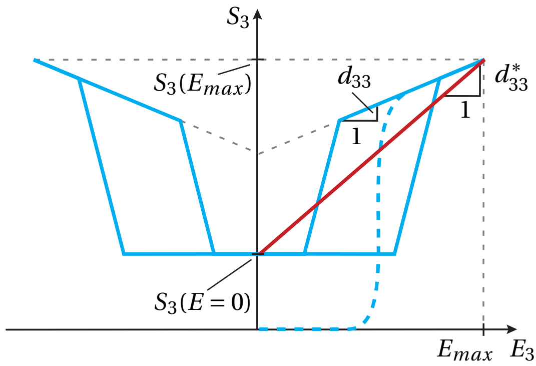


Abbildung 3.8: Berechnung des piezoelektrischen Großsignalkoeffizients d_{33}^* an einer eingeschnürten $S_3 - E_3$-Hysterese.

höher d_{33}^* ist, umso höhere Dehnungen und somit Stellwege können die Aktuatoren generieren. In Abb. 3.9 sind diese Koeffizienten für die beiden Kopplungsarten in Abhängigkeit zum Volumenanteil V_{FE} dargestellt. Da die Experimente jeweils an mehreren Proben durchgeführt wurden, sind die Standardabweichungen mit angegeben. Die Volumenanteile 0 % V_{FE} und 100 % V_{FE} stellen die reinen Komponenten als Referenzwerte dar. Somit unterscheiden sich diese bei den Kopplungsarten nicht. Für den PC-gekoppelten Fall, dargestellt durch die Kreise und die blaue Linie, ergibt sich ein nahezu linearer Verlauf, der der Mischungsregel (engl. *rule of mixtures*), also der mit dem Volumen der Komponenten korrespondierenden linearen Interpolation entspricht. Der PSC-gekoppelte Fall, dargestellt durch die Rechtecke und die schwarzen Linie, folgt mit steigendem Volumengehalt zunächst linear der Interpolation zwischen den Komponenten. Ab 30 % V_{FE} kommt es jedoch zu einer Zunahme der d_{33}^* Werte, die bei 50 % V_{FE} ein Maximum erreichen, das im Vergleich zum reinen Material (0 % V_{FE}), um etwa 15 % erhöht ist. Weitere Zusammensetzungen des Komposits wurden experimentell nicht untersucht. Es stellt sich die Frage, wie sich der Verlauf im PSC-gekoppelten Fall mit weiter steigendem Volumengehalt verhält und, ob das Maximum bereits überschritten wurde. Die Ursache der beobachteten Überhöhung ist noch nicht abschließend ergründet.

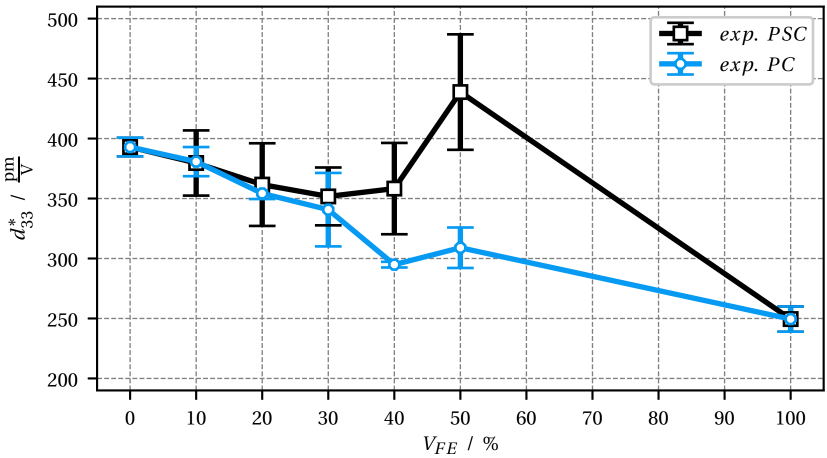


Abbildung 3.9: Experimentell ermittelte piezoelektrische Großsignalkoeffizienten d_{33}^* des Zweilagenkomposits in Abhängigkeit von veränderlichen Volumenanteilen V_{FE} für den ungeklebten (PC) und geklebten (PSC) Kopplungsfall.

Die zusätzliche Dehnungskopplung könnte eine Rolle spielen. Jedoch ist aus der vorherigen Untersuchung bekannt, dass der Einfluss des Klebers auf die Dehnungen eher gering ist. Ebenso könnte der durch den Kleber verbesserte elektrische Kontakt eine Rolle spielen.

Obwohl die Ursache des Überhöhungseffekts nicht bekannt ist, so ist für den Fall der Polarisations- und Dehnungskopplung (PSC) eine bemerkenswerte Verbesserung des piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten für die Komposite gegenüber der einzelnen Komponenten zu verzeichnen. Um die Fragen zur Ursache des Überhöhungseffekts zu klären, empfiehlt sich ergänzend zu weiteren experimentellen Untersuchungen die numerische Simulation der Komposite durchzuführen. Simulationen ermöglichen Einblicke in die inneren elektromechanischen Zustände der Komposite, die durch Experimente nicht oder nur sehr aufwendig erlangt werden können. Weiterhin besteht der Vorteil von Simulationen in der Möglichkeit, einzelne Materialparameter und

die Kopplungseigenschaften zu variieren und dadurch das Verhalten des Komposits zu optimieren. Hierbei entfällt der langwierige und komplizierte Prozess der Probenherstellung und -präparation sowie die Durchführung der Experimente mit statistisch aussagekräftiger Anzahl an Proben. Im folgenden Kapitel wird nun ein Materialmodell entwickelt, das die Charakteristik der beiden Materialien NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN hinreichend genau wiedergeben und nachfolgend zur Simulation von geschichteten Kompositen verwendet werden kann.

4 Makroskopisches Materialmodell für bleifreie Ferroelektrika

Nach bestem Wissen existiert kein vollständig elektromechanisch gekoppeltes, dreidimensionales Materialmodell, das das Hystereseverhalten von NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN hinreichend genau wiedergeben kann. Eine Übersicht über bestehende Modelle wird nachfolgend gegeben. Anschließend wird ein Materialmodell entwickelt, das die jeweiligen Besonderheiten der beiden Materialien berücksichtigt. Dieses Modell wurde bereits in einer Version zur Simulation der beiden Werkstoffe veröffentlicht [77]. Das hier präsentierte Modell enthält weitere Anpassungen zur Simulation von Mehrlagenkompositen. Damit können Simulationen im Hinblick auf die Verteilung der internen Felder und den komplexen elektromechanischen Zuständen im Bereich der Grenzschichten effektiv durchgeführt werden.

4.1 Bestehende Materialmodelle

Die Klasse der Phasenfeld-basierten Materialmodelle sind für die Simulation der Dynamik von Domänenwänden geeignet [83–89]. Diese beschränken sich praktischerweise auf die Längeskala eines Korns bzw. weniger Körner. Die hierzu benötigte Verteilung der Körner und Domänen in realen Bauteilen kann, falls überhaupt möglich, nur unter sehr hohem Aufwand erfasst werden. Die notwendige feine Auflösung der Domänenwände erzeugt enorme

Datenmengen, die die Fragestellungen auf Bauteilebene möglicherweise nur unzureichend beantworten können. Weiterhin benötigen diese Modelle sehr hohe Rechenzeiten und sind folglich kostenintensiv. Dennoch sind in [90, 91] aufeinander aufbauende Phasenfeldmodelle für NBT-basierte ferroelektrische und relaxor-ferroelektrische Materialien zur Simulation von zweidimensionalen, geschichteten Kompositen dokumentiert, mit deren Hilfe der Einfluss der Polarisations- und Dehnungskopplung untersucht wurde. Eine Übertragung der darin gewonnenen Resultate auf die in der vorliegenden Arbeit untersuchten makroskopischen Komposite ist aufgrund der unterschiedlichen Längenskalen nicht sinvoll.

Eine Alternative ist die Klasse der mikromechanischen Materialmodelle, welche hauptsächlich auf eine Längenskala vergleichbar zur Korngröße, z.B. in Anwendungen der Dünnschichttechnologie, abzielen. Zum einen werden diese bereits für das thermo-elektromechanisch gekoppelte Verhalten von Ferroelektrika verwendet, bei denen der dominierende Hystereseprozess die Bewegung der Domänenwände ist. Zum anderen werden diese für durch elektrische Felder induzierte strukturelle Phasenübergänge in Einkristall Relaxor-Ferroelektrika verwendet [92]. Eine Übersicht über mikromechanisch motivierte Modelle ist in [93] gegeben.

Für strukturmechanische Untersuchungen besser geeignet ist die Klasse der makroskopischen phänomenologischen Materialmodelle. Die grundlegende Idee zur Beschreibung von ferroelektrischen und ferroelastischen Materialien ist, das komplexe Materialverhalten der verschiedenen in den Experimenten gemessenen Hysteresen durch Approximationen unter Einführung möglichst weniger Materialparameter hinreichend genau zu idealisieren. Diese Klasse wurde für ferroelektrische Probleme zunächst in einer eindimensionalen Formulierung in [94] eingeführt und anschließend auf mehrdimensionale Formulierungen erweitert [95–101]. Diese phänomenologischen Materialmodelle unterscheiden sich in der Wahl der inneren Variablen, die zur Beschreibung der ferroelektrischen und ferroelastischen Hysteresen benötigt werden, wie

deren Sättigung modelliert wird, im Zeitintegrationsverfahren und in der benötigten Finite-Elemente-Formulierung. Alle Modellklassen zur Beschreibung ferroelektrischer Materialien haben ihre individuellen Vor- und Nachteile. Eine ausführliche Diskussion von ferroelektrischen und ferroelastischen Materialmodellen wird im Review Artikel [46] gegeben. In der vorliegenden Arbeit wird der Fokus auf die Entwicklung eines vollständig elektromechanisch gekoppelten, dreidimensionalen phänomenologischen Materialmodells gerichtet, das sich für eine Implementierung in die Finite-Elemente-Methode eignet. Für die Wiedergabe der dielektrischen, ferroelektrischen und ferroelastischen Hysteresen muss die Evolution der Polarisation und der irreversiblen Verzerrungen im Materialmodell beschrieben werden. Mit solch einem Modell können Probengeometrien wie z.B. Mehrlagenkomposite auf der Längenskala von realen Bauteilen unter verschiedenen Belastungsarten simuliert werden. Die genannten ferroelektrischen Materialmodelle sind nicht in der Lage das Verhalten der untersuchten Werkstoffe NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN zufriedenstellend zu beschreiben. Besonders der Übergang der internen ferroelektrischen Ordnung kann nicht dargestellt werden. Daher wird das Modell aus [101] um drei Funktionalitäten erweitert. Erstens, die Darstellung eingeschnürter Hysteresen. Zweitens, der Übergang der internen ferroelektrischen Ordnung mit primärem und sekundärem Lastpfad samt zugehörigem Verzerrungsverhalten. Drittens, durch Polarisation induzierte nicht-deviatorische Verzerrungen. Mit diesen Modifikationen ist das erweiterte Materialmodell in der Lage, sowohl das Verhalten von NBT-6BT als auch von NBT-6BT-4KNN wiederzugeben, obwohl beide unterschiedliche Charakteristika aufweisen. Im Folgenden wird dies ausführlich in der zeitkontinuierlichen und in der für die Finite-Elemente-Implementierung benötigten zeitdiskreten Form dargestellt.

4.2 Zeitkontinuierliches phänomenologisches Materialmodell

Das hier zu entwickelnde Materialmodell ist eine Erweiterung des Modells in [101]. Dort wird das ferroelektrische Materialverhalten mittels zweier *Umklapp-* und zweier *Sättigungsfunktionen* modelliert. Im Gegensatz zur Piezoelektrizität wird das Materialverhalten bei der Ferroelektrizität maßgebend durch die Belastungsgeschichte beeinflusst und muss daher durch innere Variablen dargestellt werden. Die Hauptaufgabe eines ferroelektrischen Materialmodells ist somit die Beschreibung der Evolution der inneren Variablen.

Die (gesamte) Polarisation $\vec{P}$ und die (gesamten) Verzerrungen $\boldsymbol{S}$ werden additiv in *reversible* (Index r) und *irreversible* (Index i) Anteile gemäß

$$\vec{P} = \vec{P}^r + \vec{P}^i, \tag{4.1}$$

und

$$\boldsymbol{S} = \boldsymbol{S}^r + \boldsymbol{S}^i \tag{4.2}$$

zerlegt. Bei der Auswertung der piezoelektrischen Gleichungen 2.49 und 2.50, wird davon ausgegangen, dass die reversiblen Anteile $\boldsymbol{S}^r = \boldsymbol{S} - \boldsymbol{S}^i$ und $\vec{D}^r = \vec{D} - \vec{P}^i$ auf makroskopischer Ebene Gitterveränderungen darstellen und daher nur sie eine Veränderung von makroskopischer Spannung und elektrischem Feld bewirken. Dagegen sollen die irreversiblen Anteile Änderungen in der makroskopischen Domänenstruktur ohne Gitterverzerrungen darstellen. Folglich ergeben sich die piezoelektrischen Gleichungen zu

$$\boldsymbol{T} = \mathbb{C}^D : \left(\boldsymbol{S} - \boldsymbol{S}^i\right) - \mathbb{h} \cdot \left(\vec{D} - \vec{P}^i\right) \tag{4.3}$$

$$\vec{E} = -\mathbb{h}^\mathsf{T} : \left(\boldsymbol{S} - \boldsymbol{S}^i\right) + \boldsymbol{\beta}^S \cdot \left(\vec{D} - \vec{P}^i\right), \tag{4.4}$$

in die nur reversible Größen eingehen. Der irreversible Verzerrungstensor

$$\boldsymbol{S}^i = \boldsymbol{S}^{ip} + \boldsymbol{S}^{im} \tag{4.5}$$

besteht aus zwei Anteilen. $\boldsymbol{S}^{ip}$ wird durch die irreversible Polarisation induziert und kann als Funktion von $\vec{P}^i$ beschrieben werden. $\boldsymbol{S}^{im}$ wird durch die mechanische Spannungen induziert und repräsentiert den irreversiblen ferroelastischen Verzerrungstensor. $\vec{P}^i$ und $\boldsymbol{S}^{im}$ sind somit die zur Beschreibung der Hysteresen notwendigen internen Variablen.

Ferroelektrische Keramiken weisen eine geschichtsabhängige Anisotropie auf. Nach dem Sintern liegt auf der makroskopischen Größenskala ein isotroper Zustand vor, der bei einer elektrischen Belastung zu einer makroskopischen Polarisation und damit zu einem geschichtsabhängigen transversalisotropen Zustand führt. In dem hier präsentierten Materialmodell wird dies durch die Abhängigkeit des piezoelektrischen Tensors $\mathbb{d}$ von der irreversiblen Polarisation $\vec{P}^i$ realisiert. Zusätzlich könnte auch die geschichtsabhängige Anisotropie des Permittivitätstensors $\boldsymbol{\kappa}^T$ und des Steifigkeitstensors $\mathbb{C}^E$ durch Berücksichtigung der Abhängigkeiten von geeigneten internen Variablen wie z.B. der irreversiblen Verzerrung realisiert werden. Dies würde die Komplexität des Modells deutlich erhöhen und die ohnehin schon herausfordernde numerische Lösung des Materialmodells weiter erschweren. Das dielektrische und elastische Verhalten liegt bereits im ungepolten Zustand vor und wird durch den Polungsprozess lediglich in gewissen Grenzen beeinflusst. Daher werden der Permittivitätstensor

$$\boldsymbol{\kappa}^T = \kappa^T \boldsymbol{I}, \tag{4.6}$$

der sich aus der skalaren Größe κ^T und dem Einheitstensor zweiter Stufe $\boldsymbol{I} = \delta_{ij}$ berechnet, und der Steifigkeitstensor $\mathbb{C}^E$ nach Gl. (2.27) in diesem Modell vereinfachend als isotrop und konstant angenommen. Weiterhin wird keine Frequenzabhängigkeit betrachtet, da die Belastungen quasistatisch aufgebracht werden. Die Komponenten des transponierten piezoelektrischen Tensors dritter Stufe $\mathbb{d}^\mathsf{T}$, welcher den linearen Zusammenhang zwischen der Polarisation und den mechanischen Spannungen des direkten piezoelektrischen

Effekts beschreibt, werden nach [46] als Funktion der irreversiblen Polarisation

$$d_{kij} = \frac{\|\vec{P}^i\|}{P^{sat}} \Big[d_\parallel \left(e_i^{P^i} e_j^{P^i} e_k^{P^i} \right) + d_\perp \left(\delta_{ij} - e_i^{P^i} e_j^{P^i} \right) e_k^{P^i} + d_= \frac{1}{2} \left(\left(\delta_{ki} - e_k^{P^i} e_i^{P^i} \right) e_j^{P^i} + \left(\delta_{kj} - e_k^{P^i} e_j^{P^i} \right) e_i^{P^i} \right) \Big] \tag{4.7}$$

definiert. Der nicht-transponierte Tensor $\mathbb{d}$ beschreibt hingegen den linearen Zusammenhang zwischen dem elektrischen Feld und der Verzerrungen des inversen piezoelektrischen Effekts. Dabei ist

$$\vec{e}^{P^i} = \frac{\vec{P}^i}{\|\vec{P}^i\|} \tag{4.8}$$

der Richtungsvektor der irreversiblen Polarisation und $d_\parallel$, $d_\perp$ und $d_=$ sind die drei piezoelektrischen Koeffizienten, die in einem in räumlicher 3-Richtung vollständig gepolten Zustand den Koeffizienten d_{33}, d_{31} und d_{15} entsprechen. Es gilt die Symmetrie $d_{kij} = d_{kji}$. Für die beiden konstitutiven piezoelektrischen Gleichungen (4.4) und (4.3) werden die Materialtensoren

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\epsilon}^T &= \epsilon_0 \boldsymbol{I} + \boldsymbol{\kappa}^T & \boldsymbol{\epsilon}^S &= \boldsymbol{\epsilon}^T - \mathbb{d}^\top : \mathbb{C}^E : \mathbb{d} \\ \boldsymbol{\beta}^S &= (\boldsymbol{\epsilon}^S)^{-1} & \mathbb{e}^\top &= \mathbb{d}^\top : \mathbb{C}^E \\ \mathbb{h}^\top &= \boldsymbol{\beta}^S \cdot \mathbb{e}^\top & \mathbb{C}^D &= \mathbb{C}^E + \mathbb{h} \cdot \boldsymbol{\epsilon}^S \cdot \mathbb{h}^\top, \end{aligned} \tag{4.9}$$

benötigt. Dabei stehen die hochgestellten Indizes ^{T}, ^{S}, ^{E} und ^{D} für konstant gehaltene mechanische Spannung, Verzerrung, elektrisches Feld sowie für die dielektrische Verschiebung. Hier wird auf die unterschiedlichen Indizes für konstante mechanische Spannung ^{T} sowie für das Transpositionssymbol $^\top$ hingewiesen. ϵ_0 beschreibt die Naturkonstante der Permittivität des Vakuums, $\boldsymbol{\epsilon}^T$ und $\boldsymbol{\epsilon}^S$ die Permittivitätstensoren in der Materie. Der Impermittivitätstensor $\boldsymbol{\beta}^S$ berechnet sich durch Invertieren des Permittivitätstensors $\boldsymbol{\epsilon}^S$ und existiert aus mathematischer Sicht nur, falls $\det(\boldsymbol{\epsilon}^S) \neq 0$ gilt. $\mathbb{e}$ und $\mathbb{h}$ sind ebenso wie $\mathbb{d}$ piezoelektrische Tensoren dritter Stufe. Der Steifigkeitstensor $\mathbb{C}^D$ ist

über den piezoelektrischen Tensor von der irreversiblen Polarisation abhängig und stimmt im ungepolten Zustand mit $\mathbb{C}^E$ überein. Die Berechnung der Evolution der internen Variablen wird nun für das elektrische und anschließend für das mechanische Verhalten dargestellt.

4.2.1 Elektrisches Verhalten

Wie bereits erwähnt, ist die Möglichkeit zur Beschreibung von eingeschnürten Hysteresen eines der Ziele dieses Modells. Um dies zu ermöglichen, wird ein Ansatz aus [102] adaptiert, der zur Beschreibung von vergleichbaren Hysteresen in ferrimagnetischen Materialien konzipiert ist. In den folgenden Abbildungen stimmt die Belastungsrichtung mit der räumlichen z- bzw. 3-Richtung des Koordinatensystems überein. In Abb. 4.1 ist eine dielektrische $D-E$-Hysterese dargestellt, die so stark eingeschnürt ist, dass zwei *lokale* Hysteresen zu erkennen sind. Diese sehen wie uneingeschnürte, jedoch kleinere Hysteresen aus, die sich in den gesättigten Bereichen berühren und deren Mittelpunkte verschoben sind. Schwarz gepunktet ist als Referenz eine uneingeschnürte dielektrische Hysterese dargestellt. Das *globale* Verhalten wird im Folgenden über die lokalen Hysteresen mit Hilfe einer Koordinatentransformation beschrieben. Dieser Ansatz funktioniert für die elektrischen $D-E$-, P^i-E- und $P-E$-Hysteresen, sowie für die mechanischen $T-S^{im}$- und $T-S$-Hysteresen. Neben der Einschnürung wird für die elektrischen Hysteresen zusätzlich ein Übergang der inneren Ordnung berücksichtigt, durch den sich der Lastpfad in einen *primären*, dargestellt durch die gestrichelte Linie, und einen *sekundären* Lastpfad, dargestellt durch die durchgehende Linie, aufteilt. In Abb. 4.2 ist der obere rechte Teil der eingeschnürten P^i-E Hysterese mit dem globalen sowie dem neu eingeführten lokalen Koordinatensystem dargestellt. Zur Unterscheidung werden die lokalen Größen zusätzlich mit dem tief gestellten Index $(\bullet)_L$ indiziert. Die Tilde $(\tilde{\bullet})$ verdeutlicht die Pfadabhängigkeit der entsprechenden Größen. Verglichen zu dem Modell in [101] werden zusätzliche Materialparameter benötigt. Die lokale elektrische Koerzitivfeldstärke E_L^c beeinflusst

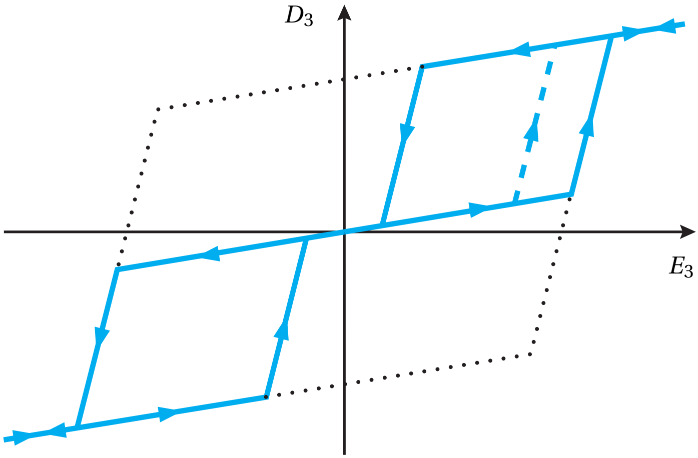


Abbildung 4.1: Eingeschnürte $D_3 - E_3$ Hysterese.

die Breite der lokalen Hysteresen und soll in dieser Arbeit nur in dem physikalisch sinnvollen Bereich $\frac{E^c_L}{E^c} \in [0,1]$ betrachtet werden. E^c ist hierbei die globale Koerzitivfeldstärke, die die Breite der globalen Hysterese beeinflusst. Weiterhin werden die Ordnungsübergangsfeldstärke (engl. *order transition field*) E^t und die dazugehörige Übergangspolarisation (engl. *transition polarization*) P^t benötigt. Diese beiden Größen lassen sich in den experimentell gemessenen $P - E$ Hysteresen leicht als Wendepunkt des primären Lastpfads bestimmen. Die nicht negative Konstante c^e beschreibt die Steigung der $P^i - E$ Hysterese während der Evolution der Polarisation. Alle weiteren lokalen Größen, die für die Beschreibung des elektrischen Verhaltens benötigt werden, lassen sich anhand geometrischer Überlegungen an den Hysteresen herleiten. Der Ursprung des lokalen $\vec{P}^i_L - \vec{E}_L$ Koordinatensystems kann im ersten oder dritten Quadraten oder als degenerierter Fall im Ursprung des globalen Koordinatensystems

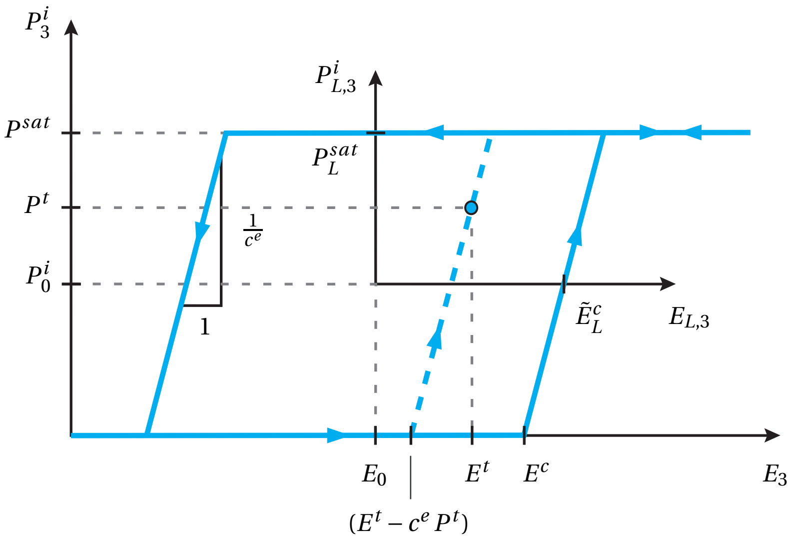


Abbildung 4.2: Oberer rechter Teil der eingeschnürten $P_3^i - E_3$ Hysterese.

liegen. Dies wird durch die dielektrische Einschnürungsfunktion (engl. *dielectric pinching function*)

$$\vec{g}_d\left(\vec{P}^i, \operatorname{grad}(\varphi)\right) = \begin{cases} \frac{\vec{P}^i}{\|\vec{P}^i\|} & \text{if } \|\vec{P}^i\| > 0 \\ -\frac{\operatorname{grad}(\varphi)}{\|\operatorname{grad}(\varphi)\|} & \text{else if } \|\vec{P}^i\| = 0 \wedge \|\operatorname{grad}(\varphi)\| > 0 \\ \vec{0} & \text{else,} \end{cases} \tag{4.10}$$

beschrieben, die drei Fälle beinhaltet. Im ersten Fall, falls $\|\vec{P}^i\| > 0$ gilt, stimmt die Funktion mit dem Richtungsvektor der irreversiblen Polarisation $\vec{e}^{P^i}$ überein. Im zweiten Fall wird zur Vermeidung der Division durch Null falls $\|\vec{P}^i\| = 0$ gilt, der negative Gradient des elektrischen Potentials gewählt. Dies wird an

dieser Stelle als antreibende Kraft für die Evolution der irreversiblen Polarisation angesehen. Falls zusätzlich $\left\|\mathrm{grad}\left(\varphi\right)\right\| = 0$ gilt, wird die Funktion zu Null gesetzt. In den ersten beiden Fällen gilt $\left\|\vec{g}_d\right\| = 1$.

Um zwischen dem primären und sekundären Lastpfad unterscheiden zu können, muss die zusätzliche interne Variable

$$p(t) = \max_t \left\|\vec{P}^i(t)\right\| \tag{4.11}$$

mit $p \in [0, P^{sat}]$ eingeführt werden. Diese Variable protokolliert die maximale Amplitude der irreversiblen Polarisation über die Belastungsgeschichte und kann folglich den Wert der Sättigungspolarisation nicht überschreiten. Der primäre Lastpfad verläuft durch den Ordnungsübergangspunkt (engl. *order transition point*), der in Abb. 4.2 durch P^t und E^t bzw. in Abb. 4.3 durch $D^t = P^t + (\varepsilon_0 + \kappa^T) \cdot E^t$ und E^t definiert und jeweils mit einem Kreis markiert ist. Die lokale pfadabhängige Koerzitivfeldstärke

$$\tilde{E}_L^c = \begin{cases} E_L^c - \left(E^c - \left(E^t - c^e \cdot P^t\right)\right) & \text{if} \quad p < P^{sat} \\ \\ E_L^c & \text{else if} \quad p = P^{sat}, \end{cases} \tag{4.12}$$

ist durch die interne Variable p gesteuert stückweise definiert. Die Bedingung $\tilde{E}_L^c > 0$ muss zur Vermeidung von unphysikalischen Zuständen eingehalten sein. Der Übergang vom primären zum sekundären Lastpfad erfolgt, sobald die Sättigungspolarisation erreicht wird. In den Abbildungen 4.2 und 4.3 ist dieser Übergang durch den Wechsel von den gestrichelten zu den durchgehenden Linien erkennbar.

Um die Position der lokalen Koordinatensysteme zu bestimmen, werden nun der Versatz (engl. *offset*) der irreversiblen Polarisation

$$P_0^i = \frac{1}{2} P^{sat}, \tag{4.13}$$

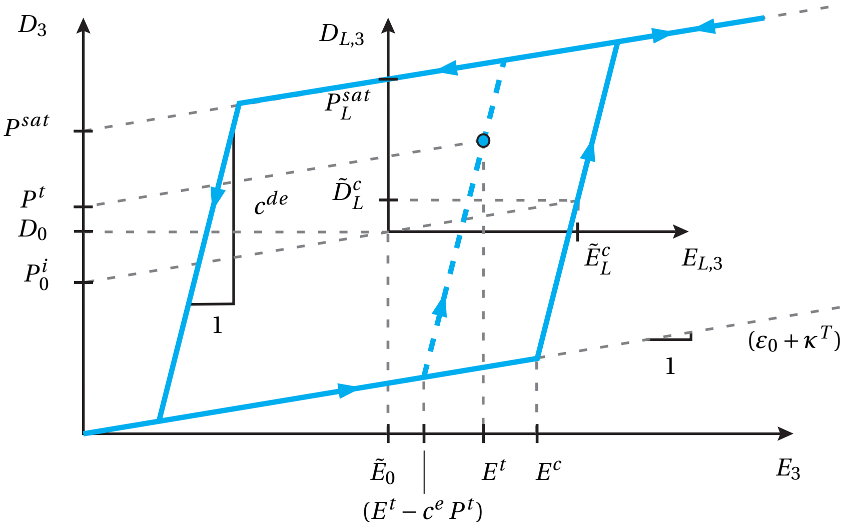


Abbildung 4.3: Oberer rechter Teil der eingeschnürten $D_3 - E_3$ Hysterese.

sowie der Versatz des elektrischen Feldes

$$E_0 = E^c - E_L^c + c^e \cdot P_0^i, \tag{4.14}$$

benötigt. Die Transformation zwischen globaler und lokaler irreversibler Polarisation folgt mit Hilfe der dielektrischen Einschnürungsfunktion zu

$$\vec{P}_L^i = \vec{P}^i - P_0^i \cdot \vec{g}_d. \tag{4.15}$$

Volumetrische mechanische Spannungen

$$\boldsymbol{T}^{\text{Vol}} = \frac{1}{3}\,\text{tr}(\boldsymbol{T}) \cdot \boldsymbol{I} \tag{4.16}$$

haben i.A. keinen Einfluss auf die irreversiblen Polarisation (im Weiteren auch als Polungszustand bezeichnet), deviatorische Spannungen

$$\boldsymbol{T}^{\text{Dev}} = \boldsymbol{T} - \frac{1}{3}\,\text{tr}(\boldsymbol{T}) \cdot \boldsymbol{I} \tag{4.17}$$

nur unter bestimmten Bedingungen. Deviatorische Druckspannungen parallel zur Richtung des Polungszustandes können diesen verringern. Dies wird als mechanische Depolarisation bezeichnet. Deviatorische Zugspannungen haben hingegen keinen Einfluss auf den Polungszustand. Eine Erhöhung bzw. Ausrichtung des Polungszustandes durch eine deviatorische Zugspannung ist nicht möglich. Um diesen Sachverhalt im Modell zu berücksichtigen, wird die Heaviside-Funktion

$$H\left(\vec{e}^{\,P^i}, \boldsymbol{T}^{\text{Dev}}\right) = \begin{cases} 1 & \text{if } \dfrac{\vec{e}^{\,P^i,\mathsf{T}}\,\boldsymbol{T}^{\text{Dev}}\,\vec{e}^{\,P^i}}{T^c} \geq 0 \\ 0 & \text{else,} \end{cases} \tag{4.18}$$

in Abhängigkeit der globalen Größen $\vec{e}^{\,P^i}$ und $\boldsymbol{T}^{\text{Dev}}$ definiert. Diese wertet aus, ob parallel zum Polungszustand ein deviatorischer Zug- ($H = 1$) oder Druckspannungszustand ($H = 0$) vorherrscht. Der Nenner in Gl. (4.18) dient zur Korrektur der Einheiten.

Im Gegensatz zum Polungszustand wird die Polarisation über die reversiblen Anteile durch den direkten piezoelektrischen Effekt von Zug- und Druckspannungen beeinflusst.

In Abb. 4.3 ist der obere rechte Teil der zugehörigen und ebenfalls eingeschnürten $D - E$ Hysterese dargestellt. Für die Transformation der dielektrischen Verschiebung zwischen globalen und lokalen Koordinaten wird zusätzlich zur Heaviside-Funktion der Versatz

$$D_0 = (\epsilon_0 + \kappa^T) \cdot E_0 + P_0^i \tag{4.19}$$

benötigt. Die Transformation zur lokalen dielektrischen Verschiebung folgt zu

$$\vec{D}_L = \left(\vec{D} - \mathbb{d}^\mathsf{T} : \boldsymbol{T}^{\mathrm{Vol}} - \mathbb{d}^\mathsf{T} : \boldsymbol{T}^{\mathrm{Dev}} \cdot H\left(\vec{e}^{\,P^i}, \boldsymbol{T}^{\mathrm{Dev}}\right)\right) - D_0 \cdot \vec{g}_d, \tag{4.20}$$

wobei die darin enthaltene globale dielektrische Verschiebung $\vec{D}$ um den Beitrag $\mathbb{d}^\mathsf{T} : \boldsymbol{T}^{\mathrm{Vol}}$ der volumetrischen Spannungen sowie um den Beitrag $\mathbb{d}^\mathsf{T} : \boldsymbol{T}^{\mathrm{Dev}} \cdot H$ der deviatorischen Spannungen in Abhängigkeit von der Heaviside-Funktion reduziert wird.

Mit der lokalen kritischen dielektrischen Verschiebung

$$\tilde{D}_L^c = (\epsilon_0 + \kappa^T) \cdot \tilde{E}_L^c, \tag{4.21}$$

wird nun die lokale dielektrische Umklappfunktion

$$f_L^d = \left\| \vec{D}_L - c^d \cdot \vec{P}_L^i \right\| - \tilde{D}_L^c \tag{4.22}$$

definiert.

Der Parameter

$$c^{de} = (\epsilon_0 + \kappa^T) + \frac{1}{c^e} \tag{4.23}$$

beschreibt die Steigung der $D - E$ Hysterese in Abb. 4.3 während der Evolution der irreversiblen Polarisation. Für die dielektrische Umklappfunktion wird jedoch der einheitenfreie Parameter

$$c^d = (\epsilon_0 + \kappa^T)\, c^e + 1 \tag{4.24}$$

benötigt, der den Zusammenhang zwischen D und P^i herstellt und damit eine „kinematische Verfestigung“ beschreibt. Die Umrechnung zwischen diesen Parametern ist im Anhang A.1 aufgeführt.

Mit der lokalen Sättigungspolarisation

$$P_L^{sat} = P^{sat} - P_0^i \cdot \left\| \vec{g}_d \right\| \tag{4.25}$$

welche für den Fall $\left\|\vec{g}_d\right\| = 0$ der globalen Sättigungspolarisation P^{sat} entspricht, wird nun die lokale dielektrische Sättigungsfunktion

$$h_L^d = \left\|\vec{P}_L^i\right\| - P_L^{sat} \tag{4.26}$$

definiert.

Die Evolutionsgleichung der internen Variable $\vec{P}_L^i$ wird zu

$$\dot{\vec{P}}_L^i = \begin{cases} 0 & \text{if } f_L^d < 0 \wedge h_L^d < 0 \\ \lambda_{f_L^d}\left(\frac{\partial f_L^d}{\partial \vec{D}_L}\right) & \text{else if } \lambda_{f_L^d} > 0 \wedge f_L^d = 0 \wedge h_L^d < 0 \\ \lambda_{h_L^d}\left(-\frac{\partial h_L^d}{\partial \vec{P}_L^i}\right) & \text{else } \lambda_{h_L^d} > 0 \wedge h_L^d = 0 \end{cases} \tag{4.27}$$

definiert und beinhaltet drei Fälle. Im ersten Fall findet keine Evolution statt. Im zweiten Fall findet die Evolution von $\vec{P}_L^i$ satt. Der dritte Fall stellt sicher, dass die Norm der irreversiblen Polarisation $\left\|\vec{P}_L^i\right\|$ nicht die Sättigungspolarisation P_L^{sat} übersteigt. Gl. (4.27) ist eine stückweise definierte, ratenunabhängige gewöhnliche Differentialgleichung (ODE) erster Ordnung. Die *Lagrange Multiplikatoren* $\lambda_{f_L^d}$ und $\lambda_{h_L^d}$ können über die Konsistenzbedingungen $\dot{f}_L^d(\lambda_{f_L^d}) = 0$ und $\dot{h}_L^d(\lambda_{h_L^d}) = 0$ bestimmt werden. Sie müssen die *Kuhn-Tucker* Komplementärbedingungen

$$\lambda_{f_L^d} \geq 0, \qquad f_L^d \leq 0, \qquad \lambda_{f_L^d} \cdot f_L^d = 0, \tag{4.28}$$

$$\lambda_{h_L^d} \geq 0, \qquad h_L^d \leq 0, \qquad \lambda_{h_L^d} \cdot h_L^d = 0, \tag{4.29}$$

erfüllen. Dabei ist die erste Bedingung nur gültig, falls $h_L^d \leq 0$ eingehalten ist. Andersherum gesagt, falls $h_L^d = 0$ gilt, ist $f_L^d > 0$ erlaubt.

Bei der Auswertung der Experimente wird der Ordnungsübergangspunkt mit dem Wendepunkt des primären Lastpfades der $P-E$- und $S-E$-Hysteresen assoziiert. Weist ein Material keinen Übergang der inneren Ordnung auf, so wird

die Übergangspolarisation P^t der Sättigungspolarisation P^{sat} gleichgesetzt. Der experimentell beobachtete sprunghafte Übergang der inneren Ordnung vom ungeordneten zum geordneten Zustand bei Erreichen der Übergangspolarisation P^t stellt eine Unstetigkeit dar. Aus mathematischer Sicht entspricht dies der *Heaviside-Funktion*

$$\beta(p) = \begin{cases} 1 & \text{if } p \geq P^t \\ \\ 0 & \text{else if } p < P^t \end{cases} \tag{4.30}$$

in Abhängigkeit der internen Variable p mit dem Wertebereich $\beta(p) \in [0,1]$. Die Funktion $\beta(p)$ wird nachfolgend für die Berücksichtigung des Ordnungsübergangs im $\boldsymbol{S}^{ip}$ Tensor benötigt. Zu Vermeidung der Unstetigkeit und damit zur Verbesserung der numerischen Stabilität wird diese als stetige Übergangsfunktion approximiert. Hierbei können verschiedene Ansätze gewählt werden. Die einfachste Approximation ist die lineare Funktion

$$\beta(p) = \begin{cases} \frac{p-P^c}{P^{sat}-P^c} & \text{if } p \geq P^c \\ \\ 0 & \text{else if } p < P^c, \end{cases} \tag{4.31}$$

deren Übergangsbereich durch die Wahl der neu eingeführten kritischen Polarisation P^c mit $P^c \leq P^t$ beeinflusst werden kann. Für NBT-6BT wird $P^c = P^{sat} - 2(P^{sat} - P^t)$ gewählt, sodass zwischen P^c und P^t sowie zwischen P^t und P^{sat} jeweils der gleiche Abstand liegt. Für NBT-6BT-4KNN wird $P^c = 0$ gewählt. Eine weitere Approximation ist die trigonometrische Funktion

$$\beta(p) = \begin{cases} \frac{1}{2}\left(\cos\left(\pi\left(\frac{p-P^c}{P^{sat}-P^c} - 1\right)\right) + 1\right) & \text{if } p \geq P^c \\ \\ 0 & \text{else if } p < P^c, \end{cases} \tag{4.32}$$

die im Gegensatz zur vorherigen Approximation auch stetig differenzierbar ist. In Abb. 4.4 ist die Evolution der beiden Approximationen dargestellt. Weiter-

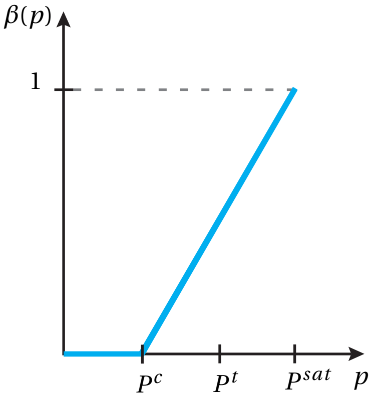


Abbildung 4.4: Schematische Evolution von $\beta(p)$ für die lineare (links) und die trigonometrische (rechts) Approximaiton.

hin kann die Sprungfunktion auch ohne Fallunterscheidung mit dem Tangens hyperbolicus

$$\beta(p) = \delta\left(\tanh\left(\gamma\left(\frac{p}{P^t} - 1\right)\right) + 1\right), \tag{4.33}$$

approximiert werden. Um den Wertebereich dieser Funktion $\beta(p)$ sicher zu stellen, wird der Parameter

$$\delta = \begin{cases} \frac{1}{2} & \text{if } P^t < P^{sat} \\ \\ 1 & \text{else if } P^t = P^{sat} \end{cases} \tag{4.34}$$

in Abhängigkeit der Übergangspolarisation P^t definiert. Dies ist in Abb. 4.5 für die beiden Fälle dargestellt. Der Parameter γ in Gl. (4.33) beeinflusst den Bereich des Ordnungsübergangs. Dieser Parameter muss hinreichend groß gewählt werden um den Ordnungsübergang abzuschließen, bevor $p = P^{sat}$ und somit der Übergang vom primären zum sekundären Lastpfad erreicht wird. Ansonsten könnte die Funktion $\beta(p)$ den Wert 1 nicht mehr erreichen. Für Materialien mit $P^t = P^{sat}$ erfolgt sowohl der Ordnungsübergang als auch der Übergang von primärem und sekundärem Lastpfad gleichzeitig.

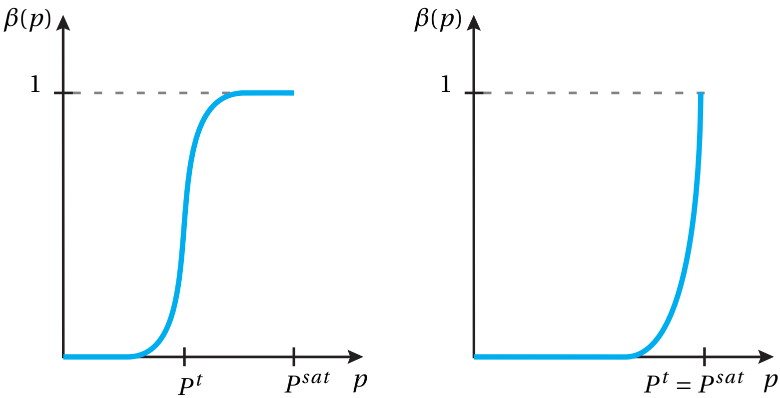


Abbildung 4.5: Evolution von $\beta(p)$ für $P^t < P^{sat}$ (links) und für $P^t = P^{sat}$ (rechts) bei der Tangens hyperbolicus Approximation.

Die Evolution der irreversiblen Polarisation $\vec{P}^i$ induziert den dreidimensionalen, nicht deviatorischen, irreversiblen polarisationsinduzierten Verzerrungstensor

$$\begin{aligned}\boldsymbol{S}^{ip} =&\beta(p)\cdot\left(\left(\frac{\|\vec{P}^i\|}{P^{sat}}\cdot(S_{\|}^{sat}-S_{\|}^{min})+S_{\|}^{min}\right)\cdot(\vec{e}^{P^i}\otimes\vec{e}^{P^i})\right.\\&\left.+\left(\frac{\|\vec{P}^i\|}{P^{sat}}\cdot(S_{\perp}^{sat}-S_{\perp}^{min})+S_{\perp}^{min}\right)\cdot(\boldsymbol{I}-\vec{e}^{P^i}\otimes\vec{e}^{P^i})\right),\end{aligned} \tag{4.35}$$

welcher stark von dem Ordnungsübergang beeinflusst wird. Diese tensorielle Funktion hängt linear von der Funktion $\beta(p)$, von der irreversiblen Polarisation $\vec{P}^i$ und den, im Verglichen zu den Formulierungen in [101] und [46], neu eingeführten Materialparametern der Sättigungs- und Minimumdehnungen $S_{\|}^{sat}\geq 0$ und $S_{\|}^{min}\geq 0$ parallel, sowie $S_{\perp}^{sat}\leq 0$ und $S_{\perp}^{min}\leq 0$ senkrecht zur Richtung der irreversiblen Polarisation ab. In Abb. 4.6 werden die $S-E$ Schmetterlingshysteresen für die Komponenten des Verzerrungstensors parallel (blau) und rechtwinklig (rot) zur elektrischen Belastung gezeigt. Hierbei sind die gesamten Verzerrungen die Summe der piezoelektrischen und der durch $\vec{P}^i$ induzierten irreversiblen Verzerrungen. Zu Beginn des primären Lastpfads, gestrichelte Linien in Abb. 4.6, gilt $p \ll P^t$ und $\beta(p)\approx 0$, weshalb keine durch die Polarisation induzierten irreversiblen Verzerrungen vorhanden sind. Der primäre Lastpfad steigt bzw. fällt steil, sobald das aufgebrachte elektrische Feld den Wert E^t erreicht. Die Hysteresen für die Verzerrungskomponenten haben die gleiche Form, jedoch unterschiedliche Vorzeichen und Beträge. Durch das eingeschnürte Verhalten der dielektrischen Hysterese weist die Schmetterlingshysterese ebenfalls eine Einschnürung auf. Auf dem sekundären Lastpfad können die Dehnungskomponenten die durch den Ordnungsübergang verursachten irreversiblen Dehnungen betragsmäßig nicht unterschreiten. Mathematisch präziser ausgedrückt gilt ab Erreichen des sekundären Lastpfades $S_{\|}\geq S_{\|}^{min}$ sowie $S_{\perp}\leq S_{\perp}^{min}$. Dies ist anhand der beiden Plateaus in Abb. 4.6 gut zu erkennen. Materialien, die keinen inneren Ordnungsübergang, je-

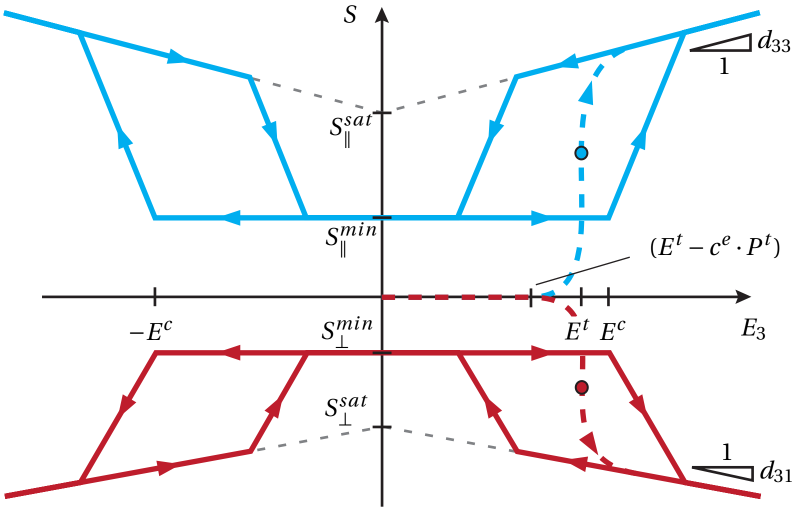


Abbildung 4.6: $S_3 - E_3$- (blau) und $S_1 - E_3$- (rot) Hysteresen mit primären (gestrichelt) und sekundären (durchgehend) Lastpfaden.

doch nicht-deviatorische, durch die Polung induzierte irreversible Verzerrungen aufweisen, können ebenfalls mit Gl. (4.35) durch Setzen von $\beta(p) = 1$ und $S_\parallel^{min} = S_\perp^{min} = 0$ modelliert werden. Dadurch vereinfacht sich diese zu

$$\boldsymbol{S}^{ip} = \frac{\|\vec{P}^i\|}{P^{sat}} \left(S_\parallel^{sat}\, \vec{e}^{\,P^i} \otimes \vec{e}^{\,P^i} + S_\perp^{sat} \left(\boldsymbol{I} - \vec{e}^{\,P^i} \otimes \vec{e}^{\,P^i} \right) \right). \tag{4.36}$$

Wird zusätzlich noch $S^{sat} = S_\parallel^{sat} = -2S_\perp^{sat}$ gesetzt, so vereinfacht sich Gl. (4.35) weiter zum deviatorischen irreversiblen polungsinduzierten Verzerrungstensor

$$\boldsymbol{S}^{ip} = \frac{3}{2} S^{sat} \frac{\|\vec{P}^i\|}{P^{sat}} (\vec{e}^{\,P^i} \otimes \vec{e}^{\,P^i} - \frac{1}{3}\boldsymbol{I}), \tag{4.37}$$

wie er in [46, 101] definiert ist.

Um die in Gl. (4.35) eingeführte Formulierung des irreversiblen polungsinduzierten Verzerrungstensors zu diskutieren, wird das folgende Beispiel betrachtet: Für ein vollständig in räumliche 3-Richtung gepoltes Material mit $\vec{P}^i = [0,\ 0,\ P^{sat}]^\mathsf{T}$ und $\|\vec{P}^i\| / P^{sat} = 1$ sowie $\beta(p) = 1$ folgt nach Gl. (4.35) der maximal mögliche irreversible Verzerrungstensor

$$\boldsymbol{S}^i_{max} = \begin{bmatrix} S_\perp^{sat} & 0 & 0 \\ 0 & S_\perp^{sat} & 0 \\ 0 & 0 & S_\parallel^{sat} \end{bmatrix} \tag{4.38}$$

mit der Norm $\|\boldsymbol{S}^i_{max}\| = \sqrt{(S_\parallel^{sat})^2 + 2(S_\perp^{sat})^2}$. Der zugehörige maximale deviatorische irreversible Verzerrungstensor berechnet sich nach $\boldsymbol{S}^{i,\mathrm{Dev}}_{max} = \boldsymbol{S}^i_{max} - \frac{1}{3}\,\mathrm{tr}(\boldsymbol{S}^i_{max}) \cdot \boldsymbol{I}$ zu

$$\boldsymbol{S}^{i,\mathrm{Dev}}_{max} = \begin{bmatrix} \frac{1}{3}(-S_\parallel^{sat} + S_\perp^{sat}) & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{3}(-S_\parallel^{sat} + S_\perp^{sat}) & 0 \\ 0 & 0 & \frac{2}{3}(S_\parallel^{sat} - S_\perp^{sat}) \end{bmatrix} \tag{4.39}$$

und besitzt die Norm

$$\left\| \boldsymbol{S}^{i,\mathrm{Dev}}_{max} \right\| = \sqrt{\frac{2}{3}} \left(S^{sat}_{\parallel} - S^{sat}_{\perp} \right). \tag{4.40}$$

Wird zusätzlich $S^{sat} = S^{sat}_{\parallel} = -2S^{sat}_{\perp}$ in Gl. (4.40) eingesetzt, so gilt $\left\| \boldsymbol{S}^{i}_{max} \right\| = \left\| \boldsymbol{S}^{i,\mathrm{Dev}}_{max} \right\| = \sqrt{\frac{3}{2}} S^{sat}$, wie es bereits aus [46, 101] bekannt ist. Die Norm eines Tensors zweiter Ordnung kann über die erste Invariante dargestellt werden. Somit sind $\left\| \boldsymbol{S}^{i}_{max} \right\|$ und $\left\| \boldsymbol{S}^{i,\mathrm{Dev}}_{max} \right\|$ unabhängig von der Polungsrichtung. Die Größe $\left\| \boldsymbol{S}^{i,\mathrm{Dev}}_{max} \right\|$ wird in der nun folgenden Beschreibung des mechanischen Verhaltens des Materialmodells benötigt.

4.2.2 Mechanisches Verhalten

Für das mechanische Verhalten des Materialmodells wird ein Einschnürungseffekt für die $T - S^{im}$- und $T - S$-Hysteresen berücksichtigt, analog zu den eingeschnürten $P^{i} - E$- und $P - E$-Hysteresen. Für die hier betrachteten keramischen Materialien können in mechanisch belasteten Experimenten aufgrund von Sprödigkeit und Probengeometrie nur die Spannungs-Dehnungsbeziehungen unter Druckbelastung ermittelt werden. Daher wird der Fokus hier auf das mechanische Verhalten im Druckbereich gelegt. Dennoch repräsentiert das Materialmodell ein in Zug- und Druckbereich symmetrisches Materialverhalten.

Die in Abb. 4.7 dargestellte, eingeschnürte ferroelastische Hysterese beinhaltet die Spannungs- und Dehnungskomponenten parallel zur Belastungsrichtung. Diese (globale) Hysterese ist so stark eingeschnürt, dass zwei lokale Hysteresen entstehen. Als Referenz ist die uneingeschnürte ferroelastische Hysterese schwarz gepunktet dargestellt. Wie bereits zuvor stimmt die Belastungsrichtung in den folgenden Abbildungen mit der räumlichen 3-Richtung des Koordinatensystems überein. Analog zur dielektrischen Hysterese kann die globale

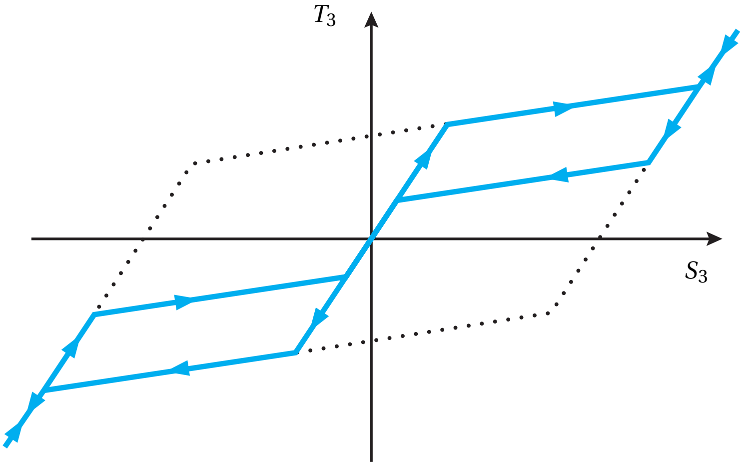


Abbildung 4.7: Eingeschnürte $T_3 - S_3$ Hysterese.

ferroelastische Hysterese durch lokale Hysteresen und eine Koordinatentransformation mit Hilfe der mechanischen Einschnürungsfunktion (engl. *mechanical pinching function*) dargestellt werden. Diese (tensorielle) Funktion wird zu

$$\boldsymbol{g}_m\left(\boldsymbol{S}^{im}, \boldsymbol{T}^{\text{Dev}}\right) = \begin{cases} \sqrt{\frac{3}{2}} \frac{\boldsymbol{S}^{im}}{\left\|\boldsymbol{S}^{im}\right\|} & \text{if } \left\|\boldsymbol{S}^{im}\right\| > 0 \\ \sqrt{\frac{3}{2}} \frac{\boldsymbol{T}^{\text{Dev}}}{\left\|\boldsymbol{T}^{\text{Dev}}\right\|} & \text{else if } \left\|\boldsymbol{S}^{im}\right\| = 0 \wedge \left\|\boldsymbol{T}^{\text{Dev}}\right\| > 0 \\ \boldsymbol{0} & \text{else} \end{cases} \tag{4.41}$$

definiert, die von der internen Variable des irreversiblen mechanischen Verzerrungstensor $\boldsymbol{S}^{im}$ sowie vom deviatorischen Spannungstensor nach Gl. (4.17) abhängt. Drei Fälle sind darin enthalten. Im ersten Fall, wenn $\left\|\boldsymbol{S}^{im}\right\| > 0$ gilt,

dann ist $\boldsymbol{g}_m$ äquivalent zum normierten irreversiblen mechanischen Verzerrungstensor. Im zweiten Fall, wenn $\|\boldsymbol{S}^{im}\| = 0$ gilt, wird zur Vermeidung der Division durch Null der normierte deviatorische Verzerrungstensor verwendet. Im dritten Fall, wenn zusätzlich $\|\boldsymbol{T}^{\mathrm{Dev}}\| = 0$ gilt, wird die Einschnürungsfunktion zu tensoriell Null gesetzt. Der Faktor $\sqrt{\frac{3}{2}}$ im ersten und zweiten Fall zwingt die Einträge von $\boldsymbol{g}_m$ zu ± 1, $\mp\frac{1}{2}$ oder 0. Hier werden die deviatorischen Größen zur Modellierung des mechanischen Verhaltens verwendet, da das Umklappen der Domänen von formändernder jedoch nicht von volumenändernder Natur sind. Der Ursprung des lokalen $T_L - S_L^{im}$ Koordinatensys-

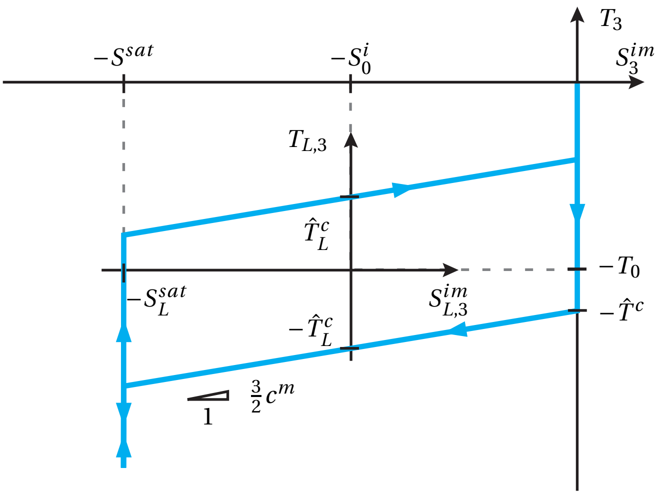


Abbildung 4.8: Druckbeanspruchter Bereich der eingeschnürten $T_3 - S_3^{im}$ Hysterese.

tems kann, in Abhängigkeit von Gl. (4.41), im ersten (Zugbeanspruchung) und dritten (Druckbeanspruchung) Quadranten oder als degenerierter Fall im Ursprung des globalen Koordinatensystems liegen.

In Abb. 4.8 ist der druckbeanspruchte Bereich der globalen $T_3 - S_3^{im}$ Hysterese mit den Spannungs- und Verzerrungskomponenten parallel zur Belastungsrichtung dargestellt. Der Ursprung des lokalen $T_L - S_L^{im}$ Koordinatensystems

wird in der Mitte der lokalen Hysterese platziert. Der Vollständigkeit halber ist die zugehörige $T_3 - S_3$ Hysterese in Abb. 4.9 dargestellt, die zusätzlich Anteile der reversiblen Verzerrung beinhaltet. Die Höhe der lokalen $T_L - S_L^{im}$ Hystere-

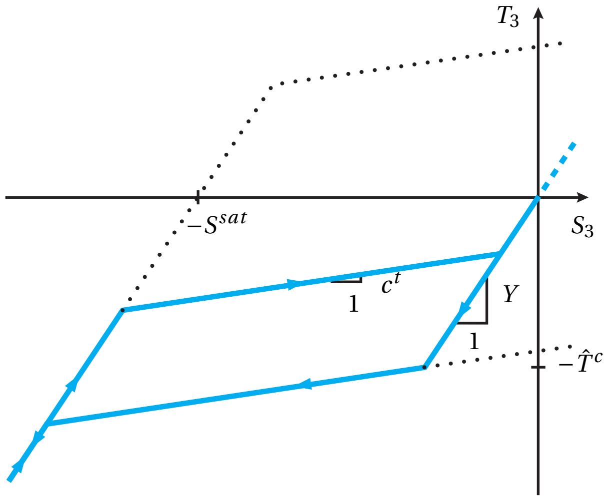


Abbildung 4.9: Druck beanspruchter Bereich der eingeschnürten $T_3 - S_3$ Hysterese.

se in Abb. 4.8 bzw. der lokalen $T_L - S_L$ Hysterese in Abb. 4.9, wird durch den neu eingeführten Parameter der lokalen mechanischen Koerzitivspannung T_L^c beeinflusst. Alle weiteren für das mechanische Verhalten des Modells notwendigen lokalen Größen werden anhand der Geometrie der Hysteresen ermittelt. Der Versatz der irreversiblen Verzerrungen

$$S_0^i = \frac{1}{2}\left(\sqrt{\frac{2}{3}}\left\|\boldsymbol{S}_{max}^{i,\mathrm{Dev}}\right\| - \sqrt{\frac{2}{3}}\left\|\boldsymbol{S}^{ip,\mathrm{Dev}}\right\|\right) \tag{4.42}$$

ist eine Funktion des maximal möglichen irreversiblen deviatorischen Verzerrungstensors nach Gl. (4.40), verringert durch den Anteil, der durch die irreversible Polarisation induziert wurde. Wie unter anderem in [46, 101] berichtet, wird das Umklappen der Domänen unter mechanischer Belastung durch ein überlagertes elektrisches Feld stabilisiert oder destabilisiert. Dieser Effekt

hängt von der Stärke des elektrischen Feldes $\vec{E}$ sowie dessen relativer Orientierung zur irreversiblen Polarisation $\vec{P}^i$ ab. Dieser Effekt wird durch die Einführung der vom elektrischen Feld abhängigen mechanischen Koerzitivspannung

$$\hat{T}^c(\vec{E},\vec{P}^i) = \left(T^c - T^c_{min}\right)\left\langle 1 + \frac{h}{T^c}\frac{\vec{E}\cdot\vec{e}^{P^i}}{E^c}\right\rangle + T^c_{min} \tag{4.43}$$

berücksichtigt. Diese beschreibt das mechanische Spannungsniveau, bei dem die Domänen im Material beginnen in nicht-180°-Richtung umzuklappen. Ein überlagertes elektrisches Feld verringert ($\vec{E}$ und $\vec{P}^i$ zeigen in die entgegengesetzte Richtung) oder erhöht ($\vec{E}$ und $\vec{P}^i$ zeigen in die gleiche Richtung) dieses Spannungsniveau. Gl. (4.43) ist eine Funktion der konstanten Koerzitivspannung T^c, der minimalen Koerzitivspannung $T^c_{min} > 0$ zur Vermeidung numerischer Probleme und des Kopplungsparameters $h \geq 0$, welcher die Stärke des Einflusses des elektrischen Feldes auf die mechanisch induzierten Umklappvorgänge beschreibt. Der Nenner im Bruch wird zur Einheitenkorrektur eingeführt. $\langle x\rangle$ ist hierbei die Klammerfunktion

$$\langle x\rangle = \begin{cases} x & \text{if } x \geq 0 \\ 0 & \text{else if } x < 0, \end{cases} \tag{4.44}$$

die in Abb. 4.10 dargestellt ist.

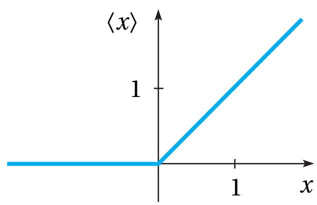


Abbildung 4.10: Klammer Funktion

Ohne übelagertes elektrisches Feld, $\vec{E} = \vec{0}$, folgt nach Gl. (4.43) $\hat{T}^c = T^c$. Stimmen die Richtungen von $\vec{E}$ und $\vec{P}^i$ überein, so ist $\hat{T}^c > T^c$. Sind die Richtungen entgegengesetzt, so ist $T^c > \hat{T}^c \geq T^c_{min} > 0$. Es wird hier angemerkt, dass Gl. (4.43) eine Verallgemeinerung der entsprechenden Funktion in [101] ist. Durch Einsetzen von $T^c_{min} = 0$ sind beide Funktionen identisch. Um die feldabhängige mechanische Koerzitivspannung in den lokalen Hysteresen zu berücksichtigen, wird die lokale feldabhängige mechanische Koerzitivspannung

$$\hat{T}^c_L = \hat{T}^c - T^c + T^c_L \tag{4.45}$$

bestimmt. Mit dem Versatz der mechanischen Spannung

$$T_0 = T^c - T^c_L + \frac{3}{2} c^m \cdot S^i_0, \tag{4.46}$$

der vom Versatz der irreversiblen Verzerrung S^i_0 nach Gl. (4.42) abhängt, ist die Position des lokalen $T_L - S^{im}_L$-Koordinatensystems festgelegt. Die Steigung der linearen kinematischen Verfestigung wird durch $c^m > 0$ in der $T_L - S^{im}_L$ Hysterese bzw.

$$c^t = \left(\frac{1}{Y} + \frac{1}{\frac{3}{2} c^m} \right)^{-1} \tag{4.47}$$

in der $T_L - S_L$ Hysterese beschrieben. Mit Hilfe von $\boldsymbol{g}_m$ nach Gl. (4.41) und dem Versatz der mechanischen Spannung nach Gl. (4.46), berechnet sich der lokale Spannungstensor zu

$$\boldsymbol{T}_L = \boldsymbol{T} - T_0 \cdot \frac{2}{3} \cdot \boldsymbol{g}_m \tag{4.48}$$

aus dem sich der lokale volumetrische Spannungstensor

$$\boldsymbol{T}^{\text{Vol}}_L = \frac{1}{3} \operatorname{tr}(\boldsymbol{T}_L) \cdot \boldsymbol{I} \tag{4.49}$$

und der lokale deviatorische Spannungstensor

$$\boldsymbol{T}^{\text{Dev}}_L = \boldsymbol{T} - \frac{1}{3} \operatorname{tr}(\boldsymbol{T}_L) \cdot \boldsymbol{I} \tag{4.50}$$

analog zu den globalen Pendants nach den Gleichungen (4.16) und (4.17) ableiten lassen. Auf gleiche Weise lässt sich der lokale irreversible mechanische Verzerrungstensor mit dem Versatz der irreversiblen Verzerrung nach Gl. (4.42) zu

$$\boldsymbol{S}_L^{im} = \boldsymbol{S}^{im} - S_0^i \cdot \boldsymbol{g}_m \tag{4.51}$$

berechnen.

Nun kann die lokale mechanische Umklappfunktion

$$f_L^m = \left\| \left(\boldsymbol{T}_L - c^m \boldsymbol{S}_L^{im} \right)^{\text{Dev}} \right\| - \sqrt{\frac{2}{3}}\, \hat{T}_L^c, \tag{4.52}$$

analog zur Fließfunktion der assoziierten *von-Mises-Plastizität* mit kinematischer Verfestigung definiert werden. Um die mechanische Sättigungsfunktion definieren zu können fehlt noch die lokale irreversible Sättigungsverzerrung

$$S_L^{sat} = \begin{cases} \sqrt{\frac{2}{3}} \left\| \boldsymbol{S}_{max}^{i,\text{Dev}} \right\| - \sqrt{\frac{2}{3}} \left\| \boldsymbol{S}^{ip,\text{Dev}} \right\| - S_0^i & \text{if } \left\| \boldsymbol{g}_m \right\| > 0 \\[2ex] \sqrt{\frac{2}{3}} \left\| \boldsymbol{S}_{max}^{i,\text{Dev}} \right\| - \sqrt{\frac{2}{3}} \left\| \boldsymbol{S}^{ip,\text{Dev}} \right\| & \text{else if } \left\| \boldsymbol{g}_m \right\| = 0 \end{cases} \tag{4.53}$$

welche zwei Fälle in Abhängigkeit von $\left\| \boldsymbol{g}_m \right\|$ beinhaltet. Der zweite Fall wird nur benötigt, um die globale Sättigungsverzerrung zu erreichen, falls $\left\| \boldsymbol{g}_m \right\| = 0$ gilt. Nun kann die mechanische Sättigungsfunktion zu

$$h_L^m = \left\| \boldsymbol{S}_L^{im} \right\| - \sqrt{\frac{3}{2}} S_L^{sat} \tag{4.54}$$

definiert werden.

Die Evolution der inneren Variable $\boldsymbol{S}_L^{im}$ wird zu

$$\dot{\boldsymbol{S}}_L^{im} = \begin{cases} 0 & \text{if } f_L^m < 0 \wedge h_L^m < 0 \\ \lambda_{f_L^m} \left(\dfrac{\partial f_L^m}{\partial \boldsymbol{T}_L} \right) & \text{else if } \lambda_{f_L^m} > 0 \wedge f_L^m = 0 \wedge h_L^m < 0 \\ \lambda_{h_L^m} \left(-\dfrac{\partial h_L^m}{\partial \boldsymbol{S}_L^{im}} \right) & \text{else } \lambda_{h_L^m} > 0 \wedge h_L^m = 0 \end{cases} \tag{4.55}$$

definiert und beinhaltet drei Fälle. Im ersten Fall sind die mechanischen Umklapp- und Sättigungsfunktionen kleiner Null und es findet keine Evolution statt. Im zweiten Fall, wenn die Umklappfunktion gleich Null und die Sättigungsfunktion kleiner Null ist, findet die Evolution von $\boldsymbol{S}_L^{im}$ statt. Der dritte Fall stellt sicher, dass bei Überschreiten der Umklappfunktion $\|\boldsymbol{S}_L^{im}\|$ den Wert S_L^{sat} nicht übersteigt. Gl. (4.55) ist eine stückweise definierte, ratenunabhängige gewöhnliche Differentialgleichung (ODE) erster Ordnung. Die *Lagrange Multiplikatoren* $\lambda_{f_L^m}$ und $\lambda_{h_L^m}$ können über die Konsistenzbedingungen $\dot{f}_L^m(\lambda_{f_L^m}) = 0$ und $\dot{h}_L^m(\lambda_{h_L^m}) = 0$ bestimmt werden. Sie müssen die beiden *Kuhn-Tucker* Komplementärbedingungen

$$\lambda_{f_L^m} \geq 0, \qquad f_L^m \leq 0, \qquad \lambda_{f_L^m} \cdot f_L^m = 0, \tag{4.56}$$

$$\lambda_{h_L^m} \geq 0, \qquad h_L^m \leq 0, \qquad \lambda_{h_L^m} \cdot h_L^m = 0. \tag{4.57}$$

erfüllen. Dabei ist die erste Bedingung nur gültig falls $h_L^m \leq 0$ eingehalten ist. Anders herum gesagt, falls $h_L^m = 0$ gilt, ist $f_L^m > 0$ erlaubt.

4.3 Zeitdiskretes Materialmodell und Integrationsalgorithmus

Wie in [101] vorgeschlagen, werden die beiden abschnittsweise definierten Evolutionsgleichungen für $\vec{P}^i_L$ und $\boldsymbol{S}^{im}_L$ nach den Gleichungen (4.27) und (4.55) mit Hilfe eines Prädiktor-Korrektor-Verfahrens, des sog. *Radial-Return-Mapping-Algorithmus* nach [103] im Rahmen eines iterativen Finite-Elemente-Lösungsverfahrens numerisch integriert. Dieses Verfahren wurde eingeführt, um das plastische Verhalten von Metallen unter Verwendung einer *Fließfunktion* mit der zugehörigen *Fließfläche* unter geringem Zeitaufwand zu berechnen. Sollte der Prädiktor außerhalb der Fließfläche liegen, wird er mit dem Korrektor in radialer Richtung auf die Fließfläche zurück projiziert. Dieser Ansatz wird nun für die Umklapp- und Sättigungsflächen adaptiert. Bevor die Berechnung starten kann, müssen die inneren Variablen ${}^0p = 0$, ${}^0\vec{P}^i = \vec{0}$ und ${}^0\boldsymbol{S}^{im} = \boldsymbol{0}$ sowie ${}^0\hat{T}^c = T^c$ in jedem Integrationspunkt (Gauß Punkt) entsprechend initialisiert werden.

Die Exponenten ${}^n(\bullet)$ und ${}^{n+1}(\bullet)$ bezeichnen die bekannten Größen aus dem vorherigen bekannten bzw. dem aktuellen zu berechnenden Zeitschritt. Die aktuellen primären Variablen ${}^{n+1}\vec{u}$, ${}^{n+1}\varphi$ und ${}^{n+1}\vec{D}$ stammen aus der FEM-Iteration. Zu Beginn jeder Iteration werden die Größen $\lambda_{f^d_L}$, $\lambda_{h^d_L}$, $\lambda_{f^m_L}$ und $\lambda_{h^m_L}$ zu Null gesetzt. Nur falls die zugehörigen Umklapp- und Sättigungsfunktionen nicht eingehalten sind, weichen die Werte dieser Größen von Null ab. Die lokale irreversible Polarisation

$$
{}^{n+1}\vec{P}^i_L = {}^n\vec{P}^i_L + \Delta\vec{P}^{i,f}_L + \Delta\vec{P}^{i,h}_L \tag{4.58}
$$

und der irreversible mechanische Verzerrungstensor

$$
{}^{n+1}\boldsymbol{S}^{im}_L = {}^n\boldsymbol{S}^{im}_L + \Delta\boldsymbol{S}^{im,f}_L + \Delta\boldsymbol{S}^{im,h}_L \tag{4.59}
$$

am Ende des aktuellen Zeitschritts werden mit den Größen des vorherigen Zeitschritts und den zugehörigen Korrektoren $\Delta\vec{P}^{i,f}_L$, $\Delta\vec{P}^{i,h}_L$, $\Delta\boldsymbol{S}^{im,f}_L$ und $\Delta\boldsymbol{S}^{im,h}_L$

berechnet. Die Herleitungen der Korrektoren sind im Anhang A.2 aufgeführt. Die Auswertung der (lokalen) Umklapp- und Sättigungsfunktionen erfolgt in hierarchischer Reihenfolge und beginnt mit der dielektrischen Umklappfunktion Gl. (4.22). Mit Hilfe der diskreten Form der dielektrischen Einschnürungsfunktion nach Gl. (4.10)

$$ {}^{n+1}\vec{g}_d\left({}^{n}\vec{P}^i, {}^{n+1}\varphi\right) = \begin{cases} \frac{{}^{n}\vec{P}^i}{\left\|{}^{n}\vec{P}^i\right\|} & \text{if } \left\|{}^{n}\vec{P}^i\right\| > 0 \\ -\frac{\operatorname{grad}({}^{n+1}\varphi)}{\left\|\operatorname{grad}({}^{n+1}\varphi)\right\|} & \text{else if } \left\|{}^{n}\vec{P}^i\right\| = 0 \wedge \left\|\operatorname{grad}\left({}^{n+1}\varphi\right)\right\| > 0 \\ \vec{0} & \text{else ,} \end{cases} \tag{4.60} $$

werden die lokalen Größen ${}^{n}\vec{P}^i_L$ und ${}^{n+1}\vec{D}_L$ nach Gleichungen (4.15) und (4.20) bestimmt.

Die diskreten Heaviside Funktion berechnet sich analog zu Gl. (4.18) zu

$$ {}^{n}H\left({}^{n}\vec{P}^i, {}^{n}\boldsymbol{T}^{\text{Dev}}\right) = \begin{cases} 1 & \text{if } \frac{{}^{n}\vec{e}^{P^i,\mathrm{T}}\,{}^{n}\boldsymbol{T}^{\text{Dev}}\,{}^{n}\vec{e}^{P^i}}{T^c} \geq 0 \\ 0 & \text{else.} \end{cases} \tag{4.61} $$

Überschreitet die dielektrische Umklappfunktion nach Gl. (4.22) mit den nun zeitdiskreten Größen

$$ f^d_L = \left\|{}^{n+1}\vec{D}_L - c^d \cdot {}^{n}\vec{P}^i_L\right\| - {}^{n}\tilde{D}^c_L \tag{4.62} $$

den Wert Null, so berechnet sich der erste Korrektor zu

$$ \Delta\vec{P}^{i,f}_L = \lambda_{f^d_L} \frac{\partial f^d_L}{\partial \vec{D}_L}. \tag{4.63} $$

Dabei ist

$$ \lambda_{f^d_L} = \frac{1}{c^d} f^d_L \tag{4.64} $$

der Betrag und

$$\frac{\partial f_L^d}{\partial \vec{D}_L} = \frac{{}^{n+1}\vec{D}_L - c^d \cdot {}^n\vec{P}_L^i}{\left\| {}^{n+1}\vec{D}_L - c^d \cdot {}^n\vec{P}_L^i \right\|} \tag{4.65}$$

die Richtung des Korrektors. Die Herleitung des Korrektors $\lambda_{f_L^d}$ ist im Anhang A.2.1 aufgeführt. Unter Berücksichtigung von $\Delta\vec{P}_L^{i,f}$ wird die dielektrische Umklappfunktion $f_L^d\left({}^{n+1}\vec{D}_L, {}^n\vec{P}_L^i + \Delta\vec{P}_L^{i,f}, \ldots\right) = 0$ erfüllt. Eine wichtige Annahme zur Vereinfachung hierbei ist, dass $\frac{\partial f_L^d}{\partial \vec{D}_L}$ während des Zeitschritts als konstant angenommen wird.

Überschreitet die diskrete Form der dielektrischen Sättigungsfunktion nach Gl. (4.26),

$$h_L^d = \left\| {}^n\vec{P}_L^i + \Delta\vec{P}_L^{i,f} \right\| - P_L^{sat} \tag{4.66}$$

den Wert Null, so berechnet sich der zweite Korrektor unter Berücksichtigung von $\Delta\vec{P}_L^{i,f}$ zu

$$\Delta\vec{P}_L^{i,h} = \lambda_{h_L^d}\left(-\frac{\partial h_L^d}{\partial \vec{P}_L^i}\right). \tag{4.67}$$

Dabei ist

$$\lambda_{h_L^d} = \left\| {}^n\vec{P}_L^i + \Delta\vec{P}_L^{i,f} \right\| - P_L^{sat} \tag{4.68}$$

der Betrag und

$$\frac{\partial h_L^d}{\partial \vec{P}_L^i} = \frac{{}^n\vec{P}_L^i + \Delta\vec{P}_L^{i,f}}{\left\| {}^n\vec{P}_L^i + \Delta\vec{P}_L^{i,f} \right\|} \tag{4.69}$$

die Richtung des Korrektors. Die Herleitung des Korrektors $\lambda_{h_L^d}$ ist im Anhang A.2.2 aufgeführt. Nun kann mit Hilfe der beiden dielektrischen Korrektoren die lokale irreversible Polarisation ${}^{n+1}\vec{P}_L^i$ zum Zeitpunkt ${}^{n+1}t$ nach Gl. (4.58) berechnet werden. Die dielektrische Sättigungsfunktion $h^d\left({}^{n+1}\vec{P}_L^i\right) = 0$ ist nun

erfüllt. Das Sättigungskriterium ist von höherer Priorität als das Umklappkriterium. Daher werden auch Zustände toleriert, in denen das Sättigungskriterium erfüllt, jedoch $f_L^d\left({}^{n+1}\vec{D}_L, {}^{n+1}\vec{P}_L^i, ...\right) > 0$ ist. Die globale irreversible Polarisation zum Zeitpunkt ${}^{n+1}t$ folgt nun zu

$$ {}^{n+1}\vec{P}^i = P_0^i \cdot {}^{n+1}\vec{g}_d + {}^{n+1}\vec{P}_L^i. \tag{4.70} $$

Nun kann der aktuelle Richtungsvektor der irreversiblen Polarisation zu

$$ {}^{n+1}\vec{e}^{P^i}\left({}^{n+1}\vec{P}^i, {}^{n+1}\varphi\right) = \begin{cases} \frac{{}^{n+1}\vec{P}^i}{\left\|{}^{n+1}\vec{P}^i\right\|} & \text{if } \left\|{}^{n+1}\vec{P}^i\right\| > 0 \\ -\frac{\operatorname{grad}\left({}^{n+1}\varphi\right)}{\left\|\operatorname{grad}\left({}^{n+1}\varphi\right)\right\|} & \text{else if } \begin{array}{l} \left\|{}^{n+1}\vec{P}^i\right\| = 0 \quad \wedge \\ \left\|\operatorname{grad}\left({}^{n+1}\varphi\right)\right\| > 0 \end{array} \\ \vec{0} & \text{else} \end{cases} \tag{4.71} $$

berechnet werden. Dieser unterscheidet sich im Vergleich zur diskreten dielektrischen Einschnürungsfunktion nach Gl. (4.60) nur durch den Zeitpunkt der Auswertung von $\vec{P}^i$. Die diskrete interne Variable

$$ {}^{n+1}p = \max\left({}^n p, \left\|{}^{n+1}\vec{P}^i\right\|\right) \tag{4.72} $$

wird nun aktualisiert und mit der linearen,

$$ {}^{n+1}\beta\left({}^{n+1}p\right) = \begin{cases} \frac{{}^{n+1}p - P^c}{P^{sat} - P^c} & \text{if} \quad {}^{n+1}p \geq P^c \\ 0 & \text{else if} \quad {}^{n+1}p < P^c, \end{cases} \tag{4.73} $$

mit der trigonometrischen,

$$ {}^{n+1}\beta\left({}^{n+1}p\right) = \begin{cases} \frac{1}{2}\left(\cos\left(\pi\left(\frac{{}^{n+1}p - P^c}{P^{sat} - P^c} - 1\right)\right) + 1\right) & \text{if} \quad {}^{n+1}p \geq P^c \\ 0 & \text{else if} \quad {}^{n+1}p < P^c, \end{cases} \tag{4.74} $$

oder mit der Tangens hyperbolicus Approximationsfunktion

$$ {}^{n+1}\beta\left({}^{n+1}p\right) = \delta\left(\tanh\left(\gamma\left(\frac{{}^{n+1}p}{P^t} - 1\right)\right) + 1\right) \tag{4.75} $$

des inneren Ordnungsübergangs wird der aktuelle, durch die Polarisation induzierte irreversible Verzerrungstensor ${}^{n+1}\boldsymbol{S}^{ip}\left({}^{n+1}\beta, {}^{n+1}\vec{P}^i\right)$ nach Gl. (4.35) berechnet. Die Materialtensoren ${}^{n+1}\mathbb{h}$, ${}^{n+1}\boldsymbol{\beta}^S$ und ${}^{n+1}\mathbb{C}^D$ sind ebenfalls Funktionen von ${}^{n+1}\vec{P}^i$ und müssen daher in jeder Iteration ausgewertet werden.

Die numerische Integration der irreversiblen Polarisation ist nun abgeschlossen und es folgt auf gleicher Weise die Integration des irreversiblen mechanischen Verzerrungstensors ${}^{n+1}\boldsymbol{S}^{im}$. Für den *Return Mapping Algorithmus* wird der globale *trial* Spannungstensor

$$ {}^{\text{trial}}\boldsymbol{T} = {}^{n+1}\mathbb{C}^D : \left({}^{n+1}\boldsymbol{S} - {}^{n+1}\boldsymbol{S}^{ip} - {}^{n}\boldsymbol{S}^{im}\right) - {}^{n+1}\mathbb{h} \cdot \left({}^{n+1}\vec{D} - {}^{n+1}\vec{P}^i\right), \tag{4.76} $$

mit den bisher aktualisierten Größen nach der konstitutiven Gl. (4.3) ausgewertet. Nur die interne variable ${}^{n}\boldsymbol{S}^{im}$ stammt aus dem vorherigen Zeitschritt. Mit Hilfe der diskreten Form der mechanischen Einschnürungsfunktion

$$ {}^{n+1}\boldsymbol{g}_m\left({}^{n}\boldsymbol{S}^{im}, {}^{n}\boldsymbol{T}^{\text{Dev}}\right) = \begin{cases} \sqrt{\frac{3}{2}}\,\frac{{}^{n}\boldsymbol{S}^{im}}{\|{}^{n}\boldsymbol{S}^{im}\|} & \text{if } \left\|{}^{n}\boldsymbol{S}^{im}\right\| > 0 \\ \sqrt{\frac{3}{2}}\,\frac{{}^{n}\boldsymbol{T}^{\text{Dev}}}{\|{}^{n}\boldsymbol{T}^{\text{Dev}}\|} & \text{else if } \left\|{}^{n}\boldsymbol{S}^{im}\right\| = 0 \wedge \left\|{}^{n}\boldsymbol{T}^{\text{Dev}}\right\| > 0 \\ \boldsymbol{0} & \text{else}\,, \end{cases} \tag{4.77} $$

welche vom irreversiblen mechanischen Verzerrungstensor und dem Spannungsdeviator des vorherigen Zeitschrittes abhängen, können die lokalen Größen ${}^{n}\boldsymbol{S}_L^{im}$ und ${}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_L$ nach Gleichungen (4.51) und (4.76) bestimmt werden. Nun kann die mechanische Umklappfunktion mit den diskreten Größen

$$ f_L^m = \left\|\left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_L - c^m\, {}^{n}\boldsymbol{S}_L^{im}\right)^{\text{Dev}}\right\| - \sqrt{\frac{2}{3}}\, {}^{n}\hat{T}_L^c, \tag{4.78} $$

analog zu Gl. (4.52) ausgewertet werden. Überschreitet diese den Wert Null, so berechnet sich der dritte Korrektor zu

$$\Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f} = \lambda_{f_L^m} \frac{\partial f_L^m}{\partial \boldsymbol{T}_L}. \tag{4.79}$$

Dabei ist

$$\lambda_{f_L^m} = \left(\frac{\boldsymbol{A}:\boldsymbol{B} - \sqrt{(\boldsymbol{A}:\boldsymbol{B})^2 - (\boldsymbol{B}:\boldsymbol{B}) \cdot \left(\boldsymbol{A}:\boldsymbol{A} - \left(\sqrt{\frac{2}{3}}\, {}^n\hat{T}_L^c\right)^2\right)}}{\boldsymbol{B}:\boldsymbol{B}} \right) \tag{4.80}$$

die Norm des Korrektors, die mit Hilfe der Abkürzungen

$$\boldsymbol{A} = \left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_L - c^m \cdot {}^n\boldsymbol{S}_L^{im}\right)^{\text{Dev}} \tag{4.81}$$

und

$$\boldsymbol{B} = \left({}^{n+1}\mathbb{C}^D : \boldsymbol{N} + c^m \cdot \boldsymbol{N}\right)^{\text{Dev}} \tag{4.82}$$

bestimmt wird. Der Normalentensor des dritten Korrektors wird zu

$$\frac{\partial f_L^m}{\partial \boldsymbol{T}_L} = \frac{\left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_L - c^m \cdot {}^n\boldsymbol{S}_L^{im}\right)^{\text{Dev}}}{\left\| \left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_L - c^m \cdot {}^n\boldsymbol{S}_L^{im}\right)^{\text{Dev}} \right\|} = \boldsymbol{N} \tag{4.83}$$

berechnet. Die Herleitung des Korrektors $\lambda_{f_L^m}$ ist im Anhang A.2.3 aufgeführt. Unter Berücksichtigung von $\Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f}$ wird die mechanische Umklappfunktion $f_L^m\left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_L, {}^n\boldsymbol{S}_L^{im} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f}, {}^n\hat{T}^c\right) = 0$ erfüllt. Dabei wird $\frac{\partial f_L^m}{\partial \boldsymbol{T}_L}$ während des Zeitschrittes als konstant angenommen.

Die diskrete Form der lokalen irreversiblen Sättigungsverzerrung

$$
{}^{n+1}S_L^{sat} = \begin{cases} \sqrt{\frac{2}{3}} \left\| \boldsymbol{S}_{max}^{i,\mathrm{Dev}} \right\| - \sqrt{\frac{2}{3}} \left\| {}^{n+1}\boldsymbol{S}^{ip,\mathrm{Dev}} \right\| - S_0^i & \text{if } \left\| {}^{n+1}\boldsymbol{g}_m \right\| > 0 \\ \sqrt{\frac{2}{3}} \left\| \boldsymbol{S}_{max}^{i,\mathrm{Dev}} \right\| - \sqrt{\frac{2}{3}} \left\| {}^{n+1}\boldsymbol{S}^{ip,\mathrm{Dev}} \right\| & \text{else if } \left\| {}^{n+1}\boldsymbol{g}_m \right\| = 0 \end{cases} \tag{4.84}
$$

wird benötigt, um die diskrete mechanische Sättigungsfunktion

$$
h_L^m = \left\| {}^{n}\boldsymbol{S}_L^{im} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f} \right\| - \sqrt{\frac{3}{2}}\, {}^{n+1}S_L^{sat} \tag{4.85}
$$

analog zu Gl. (4.54) auszuwerten. Überschreitet diese den Wert Null, so berechnet sich der vierte Korrektor unter Berücksichtigung von $\Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f}$ zu

$$
\Delta\boldsymbol{S}_L^{im,h} = \lambda_{h_L^m} \left(-\frac{\partial h_L^m}{\partial \boldsymbol{S}_L^{im}} \right). \tag{4.86}
$$

Dabei ist

$$
\lambda_{h_L^m} = \left\| {}^{n}\boldsymbol{S}_L^{im} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f} \right\| - \sqrt{\frac{3}{2}}\, {}^{n+1}S_L^{sat} \tag{4.87}
$$

die Norm des Korrektors und

$$
\frac{\partial h_L^m}{\partial \boldsymbol{S}_L^{im}} = \frac{{}^{n}\boldsymbol{S}_L^{im} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f}}{\left\| {}^{n}\boldsymbol{S}_L^{im} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f} \right\|} \tag{4.88}
$$

der Normalentensor des vierten Korrektors. Die Herleitung des Korrektors $\lambda_{h_L^m}$ ist im Anhang A.2.4 aufgeführt. Nun kann ${}^{n+1}\boldsymbol{S}_L^{im}$ mit Hilfe der beiden mechanischen Korrektoren nach Gl. (4.59) berechnet werden und die diskrete mechanische Sättigungsfunktion $h_L^m \left({}^{n+1}\boldsymbol{S}_L^{im}, {}^{n+1}\boldsymbol{S}^{ip} \right) = 0$ ist nun erfüllt. Wie auch zuvor ist das Sättigungskriterium von höherer Priorität als das Umklappkriterium. Es werden daher Zustände akzeptiert, in denen das Sättigungskriterium

erfüllt, jedoch $f_L^m\left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_L, {}^{n+1}\boldsymbol{S}_L^{im}, {}^{n}\hat{T}^c\right) > 0$ ist. Der globale irreversible mechanische Verzerrungstensor zum Zeitpunkt ${}^{n+1}t$ folgt nun zu

$$ {}^{n+1}\boldsymbol{S}^{im} = S_0^i \cdot {}^{n+1}\boldsymbol{g}_m + {}^{n+1}\boldsymbol{S}_L^{im}. \tag{4.89} $$

Mit dem Verzerrungstensor zum Zeitpunkt ${}^{n+1}t$

$$ {}^{n+1}\boldsymbol{S} = \frac{1}{2}\left(\operatorname{grad}\left({}^{n+1}\vec{u}\right) + \operatorname{grad}\left({}^{n+1}\vec{u}\right)^{\mathsf{T}}\right) \tag{4.90} $$

werden nun die zeitdiskreten konstitutiven Gleichungen

$$ {}^{n+1}\vec{E} = -{}^{n+1}\mathbb{h}^{\mathsf{T}} : \left({}^{n+1}\boldsymbol{S} - {}^{n+1}\boldsymbol{S}^{ip} - {}^{n+1}\boldsymbol{S}^{im}\right) + {}^{n+1}\boldsymbol{\beta}^S \cdot \left({}^{n+1}\vec{D} - {}^{n+1}\vec{P}^i\right) \tag{4.91} $$

$$ {}^{n+1}\boldsymbol{T} = {}^{n+1}\mathbb{C}^D : \left({}^{n+1}\boldsymbol{S} - {}^{n+1}\boldsymbol{S}^{ip} - {}^{n+1}\boldsymbol{S}^{im}\right) - {}^{n+1}\mathbb{h} \cdot \left({}^{n+1}\vec{D} - {}^{n+1}\vec{P}^i\right) \tag{4.92} $$

analog zu Gleichungen (4.4) und (4.3) ausgewertet. Sodann kann die zeitdiskrete, feldabhängige mechanische Koerzitivspannung

$$ {}^{n+1}\hat{T}^c = \left(T^c - T^c_{min}\right)\left\langle 1 + \frac{h}{T^c}\frac{{}^{n+1}\vec{E} \cdot {}^{n+1}\vec{e}^{P^i}}{E^c}\right\rangle + T^c_{min} \tag{4.93} $$

aktualisiert und für den nächsten Zeitschritt gespeichert werden.

Nun ist der gesamte Integrationsalgorithmus, der in jedem Integrationspunkt und für jeden (Pseudo-) Zeitschritt ausgewertet werden muss, abgeschlossen. Die internen Variablen können zum Zeitpunkt ${}^{n+1}t$ berechnet werden. Das iterative Lösungsverfahren der Finite-Elemente-Methode kann die primären Variablen iterieren, bis die quasi-elektromechanischen Bilanzgleichungen hinreichend erfüllt sind. In Abb. 4.11 ist der Integrationsalgorithmus als Flussdiagramm zusammengefasst dargestellt. Das hier präsentierte zeitdiskrete Materialmodell ist kein vollständig implizites Integrationsverfahren. Um plausible und verlässliche Simulationsergebnisse zu erhalten, müssen ausreichend kleine Zeitschrittweiten gewählt werden.

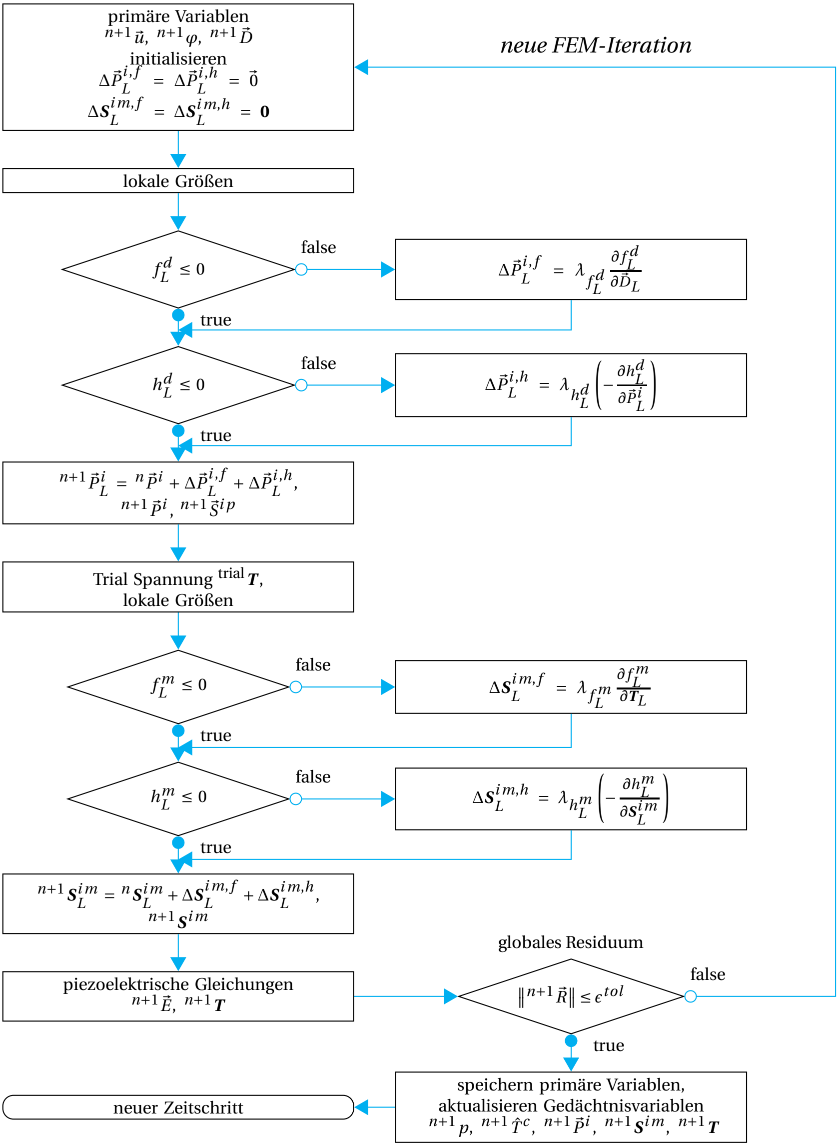


Abbildung 4.11: Flussdiagramm des Integrationsalgorithmus.

5 Verifikation und Anpassungsfähigkeit des Materialmodells

Das dreidimensionale phänomenologische Materialmodell aus Kap. 4 ist in das kommerzielle Finite-Elemente-Programm COMSOL Multiphysics™ unter Verwendung des Moduls zur gleichungsbasierten Modellierung von partiellen Differentialgleichungen implementiert. Details zur Implementierung sind in Anhang B dokumentiert. Ein großer Vorteil dabei ist die automatische Berechnung der Tangentialsteifigkeitsmatrizen über numerische Verfahren. Die zeitintensive und fehleranfällige händische Bestimmung und Implementierung der konsistenten Tangentialsteifigkeitsmatrizen kann daher entfallen. Dies ermöglicht schnelle und flexible Änderungen in der Entwicklungsphase des Modells. Dem gegenüber steht der Nachteil der längeren Rechenzeiten, da die numerische Tangentialsteifigkeitsmatrizen für jeden Freiheitsgrad und in jeder Iteration neu berechnet werden müssen.

In diesem Kapitel wird die Funktionsfähigkeit der Finite-Elemente-Implementierung überprüft, die Variabilität des Modells aufgezeigt und die Anpassung des Modells an die beiden Materialien NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN durchgeführt. Dabei werden ein Würfel als Geometrie und Tetraederelemente mit quadratischen Formfunktionen zur Diskretisierung gewählt. Die elektrische Belastung wird, falls nicht anders angegeben, an gegenüberliegenden Seitenflächen des Würfels aufgebracht. Dabei wird auf der einen Fläche das Potential $\varphi \equiv 0\,\mathrm{kV}$ und auf der anderen Fläche ein zeitabhängiges Potential $\varphi(t) =$

$\varphi_{Load}(t)$ vorgegeben. Für die mechanische Lagerung werden die minimal notwendigen Randbedingungen gesetzt. Somit ist die Geometrie nicht-kinematisch sowie zwangsfrei gelagert. Die mechanische Belastung wird gleichmäßig auf einer Fläche des Würfels durch die Spannung $T = T_{Load}(t)$ vorgegeben. Sofern nicht anders angegeben, wird die Belastung jeweils in die räumliche 3-Richtung aufgebracht.

5.1 Eingeschnürte P-E-, S-E- und T-S-Hysteresen

Die Variabilität des Modells durch die Einschnürungseffekte wird in Abb. 5.1 aufgezeigt. Dabei wird qualitativ der Einfluss des lokalen Koerzitivfeldes E_L^c und der lokalen mechanischen Koerzitivspannung T_L^c auf die entsprechenden Hysteresen anhand eines fiktiven Materials diskutiert. Als Belastungen werden jeweils ein bipolares zyklisches elektrisches Feld, dargestellt in Abb. 5.2, bzw. eine zyklische mechanische Spannung, dargestellt in Abb. 5.3, aufgebracht. Nun soll zunächst die linke Spalte in Abb. 5.1 betrachtet werden, in der $P-E$-Hysteresen für verschiedene E_L^c/E^c-Verhältnisse dargestellt sind. Für alle Verhältnisse sind die primären Lastpfade identisch. Die Unterschiede in den sekundären Lastpfaden werden nun diskutiert. Für $E_L^c/E^c = 1$ ist die Hysterese, der primäre Lastpfad ausgenommen, identisch mit dem Modell in [101] und es ist keine Einschnürung vorhanden. Für $E_L^c/E^c = 3/4$ ist eine leicht eingeschnürte Hysterese sichtbar. Wird das Verhältnis zu $E_L^c/E^c = 1/2$ reduziert, so entstehen zwei lokale Hysteresen, die sich im Ursprung berühren. Bei weiterer Reduktion des Verhältnisses, hier für $E_L^c/E^c = 1/4$ gezeigt, verringern die lokalen Hysteresen weiter ihre Breite und separieren sich zunehmend voneinander.

Nun wird die mittlere Spalte in Abb. 5.1 betrachtet, in der die zugehörigen $S-E$-Schmetterlingshysteresen für die Verzerrungskomponente parallel zur

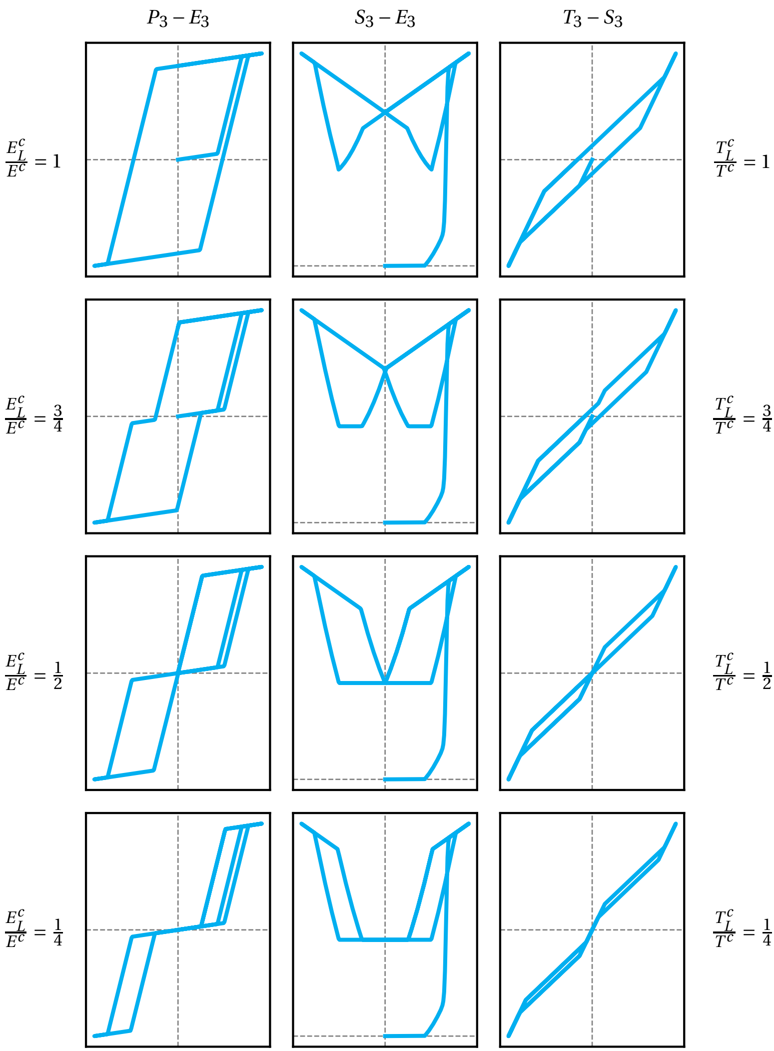


Abbildung 5.1: Einfluss von E_L^c auf $P_3 - E_3$- (links) und $S_3 - E_3$- (mitte) Hysteresen, Einfluss von T_L^c auf $T_3 - S_3$- (rechts) Hysteresen. Fiktives Material.

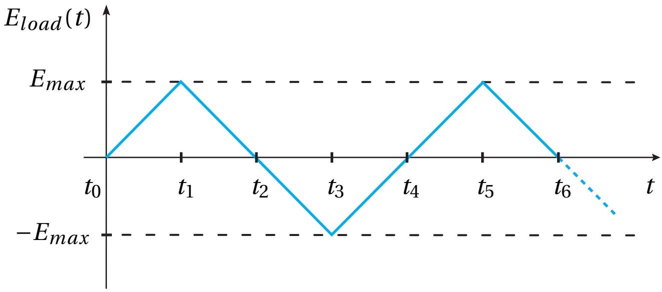


Abbildung 5.2: Zyklische bipolare elektrische Belastung

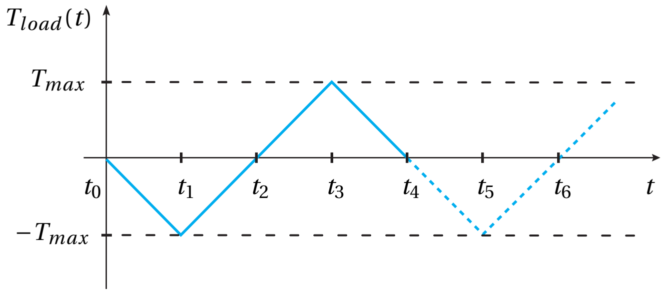


Abbildung 5.3: Zyklische mechanische Belastung

Belastungsrichtung dargestellt sind. Für alle E_L^c/E^c- Verhältnisse ist die Evolution des inneren Ordnungsübergangs identisch. Nach dem Ordnungsübergang ist $S_\parallel^{min}$ die minimale Verzerrung, die hier zu $0.5 \cdot S_\parallel^{sat}$ gewählt wurde. Für das Verhältnis $E_L^c/E^c = 1$ weist die Hysterese scharfe Spitzen im unteren und Geraden mit konstanten Steigungen im oberen Bereich auf. Diese beiden Geraden schneiden sich bei verschwindendem elektrischem Feld mit dem Wert der Sättigungsdehnung $S_\parallel^{sat}$. Die Verringerung des Verhältnisses zu $E_L^c/E^c = 3/4$ führt zur Bildung von Plateaus im unteren linken und rechten Bereich der Hysterese auf Höhe der minimalen Verzerrung $S_\parallel^{min}$. Die oberen Geraden sacken nun früher ab. Für das Verhältnis $E_L^c/E^c = 1/2$ berühren sich die beiden

Plateaus. Eine weitere Verringerung des Verhältnisses, hier für $E_L^c/E^c = 1/4$ gezeigt, führt zu weiter abnehmender Breite der lokalen Hysteresen.

Nun wird die rechte Spalte in Abb. 5.1 betrachtet. Diese enhält die ferroelastischen $T-S$-Hysteresen für verschiedene T_L^c/T^c-Verhältnisse. Dargestellt sind die Spannungs- und Dehnungskomponenten parallel zur Belastungsrichtung. Für das Verhältnis $T_L^c/T^c = 1$ ist kein Einschnürungseffekt vorhanden und die Hysterese verhält sich analog zu den Materialmodellen in [46, 101]. Wird das Verhältnis zu $T_L^c/T^c = 3/4$ verringert, so ist die Hysterese leicht eingeschnürt. Bei einem Verhältnis von $T_L^c/T^c = 1/2$ sind zwei lokale Hysteresen erkennbar, die sich im Ursprung berühren. Hysteresen mit einem Verhältnis von $T_L^c/T^c \leq 1/2$ zeigen ein *pseudoelastisches* Verhalten, das von Formgedächtnislegierungen (engl. *shape-memory alloys*) bekannt ist [104].

5.2 Elektrische und mechanische Belastung der Komponenten

Die Anpassung des Modells an die beiden Materialien NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN ist in Abb. 5.4 abgebildet. Darin sind die experimentellen Daten sowie das angepasste Materialmodell für NBT-6BT bzw. NBT-6BT-4KNN dargestellt. Die zugehörigen Materialparameter sind in Tab. 5.1 aufgelistet. Aus den durchgeführten Experimenten können die Materialparameter ν, d_{15}, T_{min}^c und h nicht bestimmt werden. Daher sind für diese Annahmen zu treffen. Die experimentelle Bestimmung der elektrischen Leitfähigkeiten ist in Kap. 3.4 aufgeführt. Um die ohnehin hohe Komplexität des Materialmodells nicht weiter zu steigern, wird die Feldabhängigkeit der Leitfähigkeit vernachlässigt. Stattdessen werden die arithmetisch gemittelten Messwerte als Konstante angenommen. Es hat sich gezeigt, dass die elektrische Leitfähigkeit mit der im Experiment vorgegebenen Belastungsfrequenz von 0.01 Hz keinen Einfluss auf die simulierten Hysteresen der beiden Materialien hat. Die simulierte $P-E$-

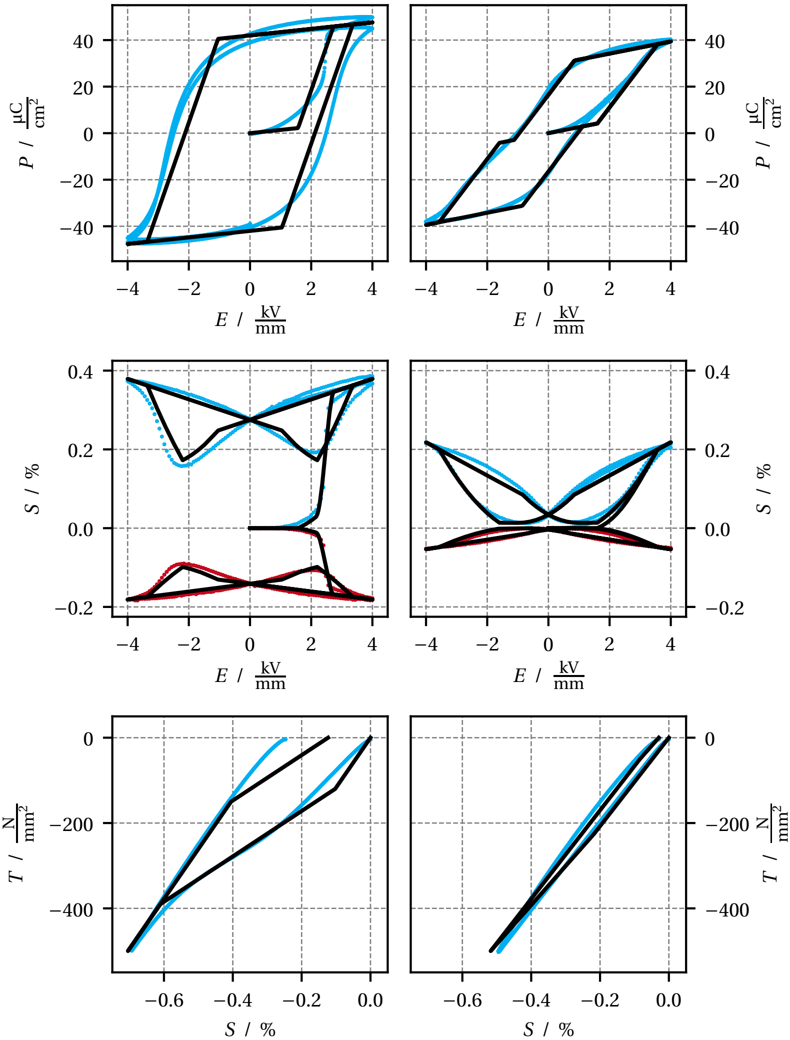


Abbildung 5.4: Simulierte (schwarz) und experimentell ermittelte (blau / rot) $P_3 - E_3$-, $S_3 - E_3$- und $S_1 - E_3$- sowie $T_3 - S_3$-Hysteresen von NBT-6BT (links) und NBT-6BT-4KNN (rechts).

Tabelle 5.1: Materialparameter

	NBT-6BT	NBT-6BT-4KNN	units
E^c	$2.20 \cdot 10^6$	$1.6 \cdot 10^6$	V/m
E^c_L	$2.20 \cdot 10^6$	$1.36 \cdot 10^6$	V/m
E^t	$2.44 \cdot 10^6$	$3.57 \cdot 10^6$	V/m
P^{sat}	0.42	0.29	C/m^2
P^t	0.316	0.29	C/m^2
P^c	0.21	0.00	C/m^2
c^e	$2.75 \cdot 10^6$	$6.80 \cdot 10^6$	V^2/N
d_{33}	$0.26 \cdot 10^{-9}$	$0.42 \cdot 10^{-9}$	m/V
d_{31}	$-0.10 \cdot 10^{-9}$	$-0.12 \cdot 10^{-9}$	m/V
d_{15}	$0.20 \cdot 10^{-9}$	$0.20 \cdot 10^{-9}$	m/V
κ^T	$14.00 \cdot 10^{-9}$	$26.00 \cdot 10^{-9}$	N/V^2
$S^{sat}_{\parallel}$	$2.75 \cdot 10^{-3}$	$5.00 \cdot 10^{-4}$	–
$S^{sat}_{\perp}$	$-1.41 \cdot 10^{-3}$	$-0.55 \cdot 10^{-4}$	–
$S^{min}_{\parallel}$	$1.725 \cdot 10^{-3}$	$1.37 \cdot 10^{-4}$	–
$S^{min}_{\perp}$	$-0.985 \cdot 10^{-3}$	$-0.10 \cdot 10^{-4}$	–
T^c	$0.12 \cdot 10^9$	$0.22 \cdot 10^9$	N/m^2
T^c_L	$0.12 \cdot 10^9$	$0.22 \cdot 10^9$	N/m^2
T^c_{min}	$6 \cdot 10^6$	$11 \cdot 10^6$	N/m^2
c^m	$65 \cdot 10^9$	$500 \cdot 10^9$	N/m^2
Y	$117 \cdot 10^9$	$104 \cdot 10^9$	N/m^2
h	$0.06 \cdot 10^9$	$0.11 \cdot 10^9$	N/m^2
ν	0.33	0.33	–
γ	15	8	–
σ	$8.08 \cdot 10^{-11}$	$1.65 \cdot 10^{-11}$	S/m

Hysterese von NBT-6BT zeigt einen inneren Ordnungsübergang mit primärem und sekundärem Lastpfad und ist in guter Übereinstimmung mit dem Experiment. Auch für NBT-6BT-4KNN stimmt die simulierte $P-E$-Hysterese gut mit dem Experiment überein. Hier ist ein leichter Einschnürungseffekt sichtbar, jedoch nahezu kein interner Ordnungsübergang. Die simulierten $S-E$-Hysteresen (parallel und rechtwinklig zur Belastungsrichtung) stimmen für beide Materialien gut mit den Experimenten überein. Hierbei wird als Approximation für den Ordnungsübergang die trigonometrische Funktion nach Gl. (4.32) verwendet. Kleinere Abweichungen sind lediglich an den äußeren Spitzen bei NBT-6BT und dem primären Lastpfad von NBT-6BT-4KNN zu erkennen und können vernachlässigt werden. Die simulierten $T-S$-Hysteresen stimmen ebenfalls gut mit den Experimenten überein. Lediglich auf dem Entlastungspfad bei NBT-6BT ist eine Abweichung erkennbar. Dies wird durch die Linearität der kinematischen Verfestigung der mechanischen Umklappfunktion verursacht.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass die simulierten Hysteresen sehr gut mit den Experimenten übereinstimmen und dass das hierfür speziell entwickelte Materialmodell sehr gut zur Simulation der untersuchten bleifreien Materialien geeignet ist.

5.3 Formulierung der Ordnungsübergangsvariable

Hier soll nun genauer auf den primären Lastpfad der $S-E$-Hysteresen und damit auf die Formulierung der Ordnungsübergangsvariable β nach Gleichungen (4.31) - (4.33) eingegangen werden. In Abb. 5.5 sind für die drei verschiedenen Formulierungen Ausschnitte der simulierten S_3-E_3 bzw. S_1-E_3-Hysteresen sowie die experimentell ermittelten Hysteresen der Materialien NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN dargestellt. Für NBT-6BT sind auf dem primären

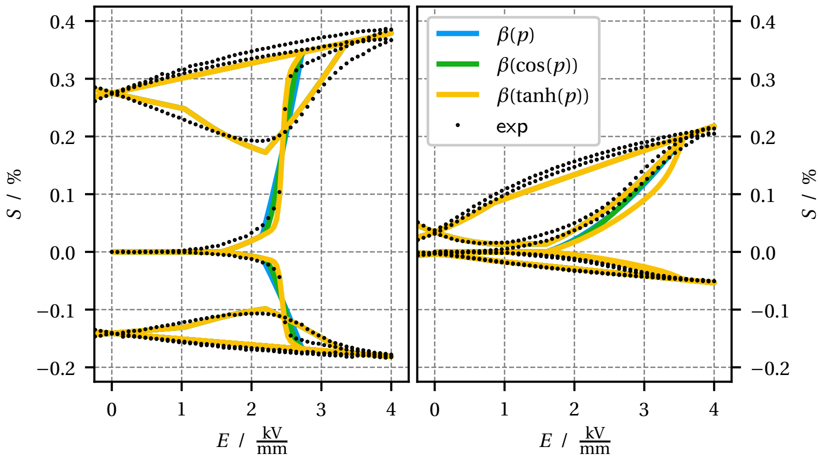


Abbildung 5.5: Vergleich der verschiedenen Formulierungen der Ordnungsübergangsvariable β: linear (blau), mit Cosinus Funktion (grün) und mit Tangenshyperbolicus Funktion (gelb) sowie die experimentellen Daten (schwarz) in den $S_3 - E_3$- bzw. $S_1 - E_3$-Teilhysteresen von NBT-6BT (links) und NBT-6BT-4KNN (rechts).

Lastpfad nahezu keine Unterschiede zwischen den verschiedenen Formulierungen sowie eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Experiment erkennbar. Für BT-6BT-4KNN liegen die lineare und die trigonometrische Formulierung näher am Experiment. Weiterhin hat sich gezeigt, dass Letztere bei der Simulation der Zweilagenkomposite, im Vergleich zu den anderen beiden Formulierungen, eine höhere numerische Stabilität besitzt. Aus diesen Gründen wird die trigonometrische Formulierung der Ordnungsübergangsvariable nach (4.32) in allen nachfolgenden Simulationen verwendet.

5.4 Einfluss der mechanischen Spannung auf die Polarisation

In diesem Beispiel wird der Einfluss von Zug- und Druckspannungen auf die irreversible Polarisation ohne und mit einem überlagerten elektrischen Feld untersucht. Hierbei sind zwei Aspekte wichtig: Zum einen dürfen mechanische Zugspannungen die irreversible Polarisation nicht erhöhen bzw. Domänen nicht in ihre Richtung ausrichten. Der Hintergrund dieses Verhaltens liegt in der tetragonal verzerrten Kristallstruktur der Materialien, die in Kap. 2.1 ausführlich diskutiert wird. Zum anderen können deviatorische Druckspannungen die irreversible Polarisation verringern und dabei 90° Umklappvorgänge ohne bevorzugte Ausrichtung, jedoch mit Abbau der irreversiblen Polarisation verursachen. Dieser Vorgang wird als mechanische Depolarisation bezeichnet. Für beide Aspekte gilt, dass diese aufgrund der Querdehnung der Materialien ebenfalls durch mechanischen Querdruck bzw. Querzug verursacht werden können. Ein Beispiel hierfür sind biaxiale Zug- und Druckversuche. Volumetrische Spannungen haben hingegen keinen Einfluss auf die Polarisation, da die Umklappvorgänge der Polarisation von formändernder, jedoch nicht von volumenändernder Natur sind. Das vorgestellte Modell in Kap. 4 ist so konstruiert, dass die beiden genannten Anforderungen erfüllt sind.

Dies wird nun anhand der folgenden Simulationen aufgezeigt. Dazu werden die beiden Materialien NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN zunächst durch eine elektrische Belastung in einen teilgepolten Zustand mit $\left\|\vec{P}^i\right\|/P^{sat} < 1$ gebracht. Die irreversible Polarisation darf dabei nicht der Sättigungspolarisation P^{sat} entsprechen, da ansonsten direkt die dielektrische Sättigungsfunktion nach Gl. (4.26) aktiviert wird, ohne den Einfluss einer Zugspannung auf die irreversible Polarisation aufzuzeigen. Hierfür wird NBT-6BT mit einem maximalen elektrischen Feld von $E = 2.5\,\mathrm{kV/mm}$ und NBT-6BT-4KNN mit $E = 4.0\,\mathrm{kV/mm}$ belastet. Anschließend wird eine einachsiale Zug- bzw. Druckspannung mit $T = \pm 400\,\mathrm{N/mm^2}$ aufgebracht. Um den Einfluss eines überlagerten elektrischen Feldes zu untersuchen, werden zusätzlich die elektrischen

Felder $\bar{E} = \pm 0.2\,\mathrm{kV/mm}$ überlagert. Die aufgebrachten elektrischen und mechanischen Belastungen sind in den Abbildungen 5.6 und 5.7 dargestellt. Dabei hat die Belastungsdauer aufgrund der ratenunabhängigen Modellformulierung keine physikalische Bedeutung. Es ergeben sich je Material mit den drei elektrischen Feldern $\bar{E} = \{-0.2, \pm 0.0, +0.2\}\,\mathrm{kV/mm}$ und den beiden mechanischen Belastungen $T = \pm 400\,\mathrm{N/mm^2}$ jeweils sechs Simulationen, deren Ergebnisse in Abb. 5.8 für NBT-6BT und in Abb. 5.9 für NBT-6BT-4KNN dargestellt sind. Hierbei ist jeweils die mechanische Spannung T_3 über der irreversiblen Polarisation P_3^i aufgetragen. Als Referenz ist jeweils die Sättigungspolarisation P^{sat} aufgeführt. Zur besseren Vergleichbarkeit zwischen den beiden Abbildungen sind die gleichen Wertebereiche dargestellt.

Quantitativ zeigen beide Materialien das gleiche Verhalten. Zunächst wird durch die elektrische Belastung die irreversible Polarisation erzeugt, die bei NBT-6BT-4KNN aufgrund der relaxorischen Eigenschaften in Abhängigkeit von $\bar{E}$ teilweise zurückgeht. Wird eine Zugspannung (positiv) aufgebracht, so ändern sich unabhängig von $\bar{E}$ die Werte der irreversiblen Polarisation nicht und der Abstand zur Sättigunspolarisation bleibt unverändert. Somit haben Zugspannungen keinen Einfluss auf die Polarisation. Wird hingegen eine Druckspannung (negativ) aufgebracht, so verringert sich die irreversible Polarisation in einem nichtlinearen Zusammenhang bis die maximale Druckspannung erreicht ist. Ein hierbei überlagertes elektrisches Feld kann die mechanische Depolarisierung begünstigen ($\vec{E} \parallel \vec{P}^i$, entgegengesetzt gerichtet) oder erschweren ($\vec{E} \parallel \vec{P}^i$, gleich gerichtet). Somit ist bewiesen, dass das entwickelte Materialmodell das gewünschte physikalische Verhalten sowohl für NBT-6BT als auch für NBT-6BT-4KNN wiedergibt.

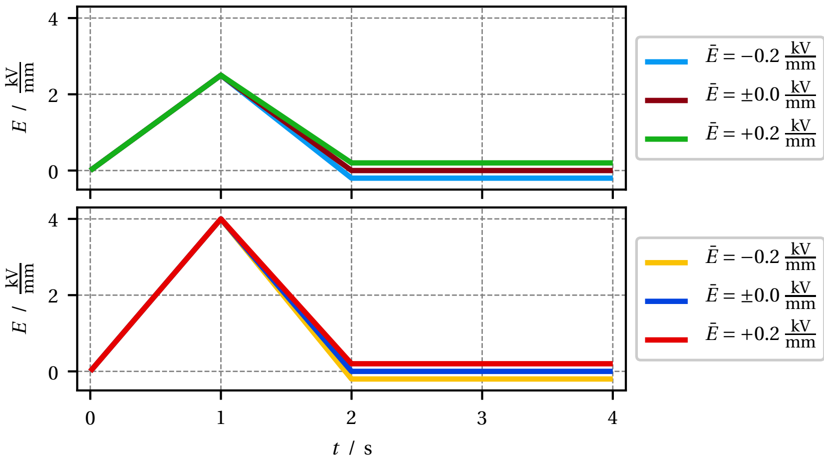


Abbildung 5.6: Zeitlich veränderliche elektrische Belastung von NBT-6BT (oben) und NBT-6BT-4KNN (unten).

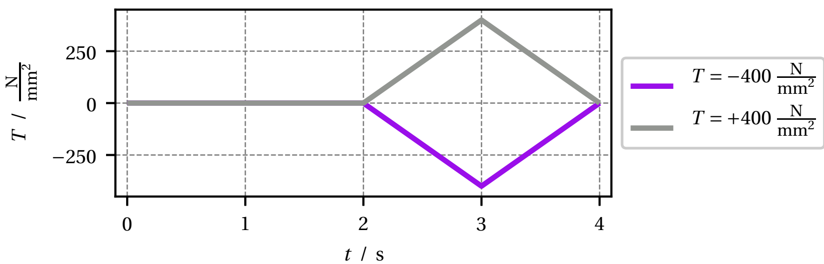


Abbildung 5.7: Zeitlich veränderliche mechanische Belastung von NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN.

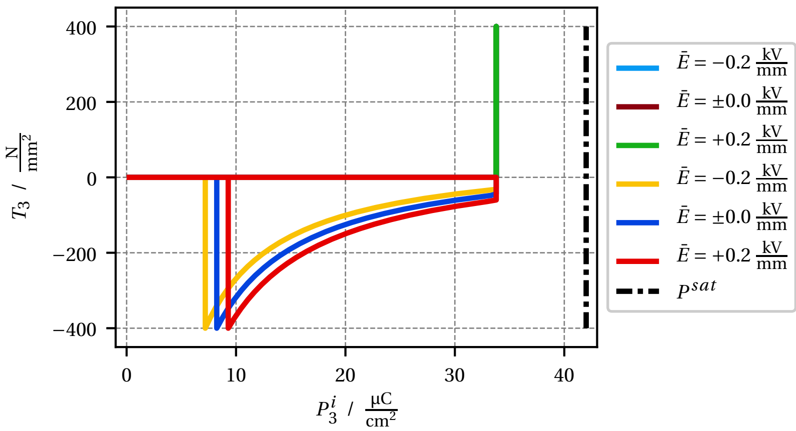


Abbildung 5.8: Einfluss der mechanischen Spannung auf die irreversible Polarisation im Material NBT-6BT

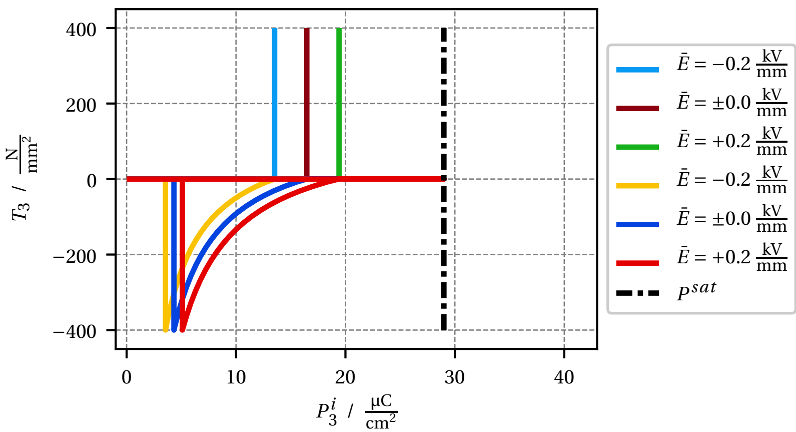


Abbildung 5.9: Einfluss der mechanischen Spannung auf die irreversible Polarisation im Material NBT-6BT-4KNN

6 Finite-Elemente-Simulationen von Zweilagenkompositen

Im vorigen Kapitel wurde das in Kap. 4 entwickelte Materialmodell verifiziert und an die beiden Werkstoffe NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN angepasst. In diesem Kapitel werden nun Simulationen von elektromechanisch gekoppelten Zweilagenkompositen bestehend aus diesen realen Materialien betrachtet. Fragen, die durch die experimentellen Untersuchungen der Komposite in Kap. 3 unbeantwortet blieben, werden hier erneut aufgegriffen. Ebenso werden die experimentell nicht messbaren inneren Felder des Komposits und deren Beeinflussung durch die elektrische Leitfähigkeit betrachtet. Hierzu werden verschiedene Finite-Elemente-Modelle des Zweilagenkomposits aufgebaut, berechnet, untereinander und mit den verfügbaren experimentellen Versuchsdaten verglichen und die auftretenden Abweichungen diskutiert. Besonderes Augenmerk liegt hierbei auf den Hysteresen, den piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten und auf dem Einfluss der elektrischen Leitfähigkeit.

6.1 Finite-Elemente-Modelle

Zur Simulation der Zweilagenkomposite werden zwei verschiedene FEM-Modelle verwendet. Diese unterscheiden sich in der Abstraktion der realen Experimente, also in der Modellbildung. Die Unterschiede beziehen sich auf die Geometrie sowie auf die elektrischen und mechanischen Randbedingungen.

Es gilt dabei die Waage zwischen den berücksichtigten Effekten und dem Berechnungsaufwand zu halten. Erstellung und Berechnung der FEM-Modelle erfolgt im kommerziellen FEM-Programm COMSOL Multiphysics™. Details zur Implementierung sind in Anhang B dokumentiert. Zur sprachlichen Vereinfachung werden die beiden Materialien NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN wie bereits erwähnt als Ferroelektrikum (FE) bzw. Relaxor (RE) bezeichnet.

6.1.1 Viertelmodell

Zur möglichst realitätsnahen Simulation des Zweilagenkomposits und zum Vergleich mit den Experimenten wird ein dreidimensionales Finite-Elemente-Modell erstellt. Darin wird die reale würfelförmige Probengeometrie durch Ausnutzung der Symmetrie und durch Aufbringen der entsprechenden Symmetrierandbedingungen auf ein Viertelmodell reduziert. Dies führt ohne Verlust an Informationen zu deutlichen Einsparungen der Berechnungsdauer, der zu speichernden Datenmenge und des Speicherbedarfs des Gleichungslösers. Somit weisen die Seitenlängen des Viertelmodells die Längen $l_x = l_y = 2\,\mathrm{mm}$ und $l_z = 4\,\mathrm{mm}$ auf. An der unteren „inneren“ Ecke des Viertelmodells wird ein kartesisches Koordinatensystem platziert. Die Gemometrie ist in Abb. 6.1 dargestellt. Als mechanische Randbedingungen werden in den Ebenen $x = 0$ und $y = 0$ Symmetrierandbedingungen aufgebracht und im Ursprung die Verschiebung in z-Richtung zu null gesetzt. Wie für piezo- und ferroelektrische Werkstoffe üblich, wird die elektrische Belastung in der z-Richtung aufgebracht. Als elektrische Randbedingungen werden in der Ebene $z = 0$ das Potential $\varphi = 0$ und in der Ebene $z = l_z$ die zyklische bipolare Belastung $\varphi = -E_{load}(t) \cdot l_z$ analog zu Abb. 5.2 aufgebracht.

Durch Aufeinanderlegen der beiden Komponenten (Ausgangsmaterialien) entsteht ein Komposit, der durch den elektrischen Kontakt eine Polarisationskopplung (engl. *polarization coupling*), im Folgenden mit PC abgekürzt, aufweist. Die beiden aufeinander gelegten Komponenten können sich unabhängig voneinander und somit zwangsfrei verformen. Für die Simulation wird

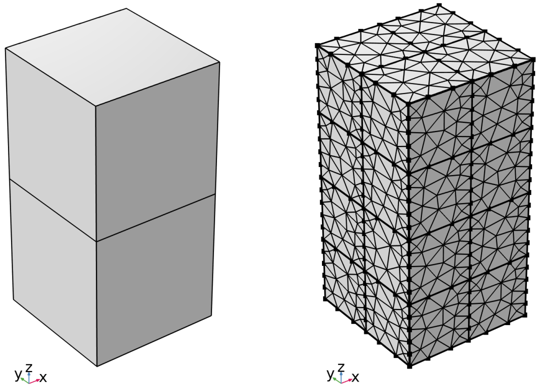


Abbildung 6.1: Geometrie (links) und Finite-Elemente-Netz (rechts) des Viertelmodells für 50 % V_{FE}.

ein perfekter elektrischer Kontakt angenommen. In der Grenzfläche gelten die folgenden Übergangsbedingungen $[\![\dot{\vec{D}} + \vec{J}]\!] \cdot \vec{n} = 0$, $[\![\varphi]\!] = 0$, $[\![\vec{D}]\!] \cdot \vec{n} = w^F$ und $[\![\vec{u}]\!] \cdot \vec{n} = 0$ zwischen den beiden Materialien. Diese fordern einen stetigen Verlauf des Stroms bei Berücksichtigung der Leitfähigkeit. Die Stetigkeit des Potentials und der Verschiebung normal zur Grenzfläche werden ebenfalls eingefordert. Die dielektrische Verschiebung wird hingegen nicht stetig eingefordert. Aus der Differenz $[\![\vec{D}]\!]$ rechtwinklig zur Grenzfläche kann die dort wirkende Oberflächenladungsdichte w^F berechnet werden. In diesem Kontext ist die Bezeichnung *Grenzflächenladungsdichte* passender. Im Falle von nichtleitenden Materialien ergibt sich ein stetiger Übergang der Polarisation an der Grenzfläche.

Werden die beiden Komponenten durch einen elektrisch leitenden Kleber miteinander verklebt, so entsteht eine Polarisations- und Dehnungskopplung (engl. *polarization and strain coupling*), die im Folgenden mit PSC abgekürzt

Tabelle 6.1: Übersicht der Rand- und Übergangsbedingungen des Viertelmodells

Ebene	Punkt	Rand- und Übergangsbedingung
$x = 0$		$u_y = 0$
$y = 0$		$u_x = 0$
	$x = 0,\ y = 0,\ z = 0$	$u_z = 0$
$z = l_z$		$\varphi = -E_{load}(t) \cdot l_z$
$z = 0$		$\varphi = 0$
Grenzfläche		$u_{1,unten} = u_{1,oben}$ (für PSC)
		$u_{2,unten} = u_{2,oben}$ (für PSC)
		$u_{3,unten} = u_{3,oben}$
		$\varphi_{unten} = \varphi_{oben}$

wird. Die Verklebung wird als unendlich dünn, unnachgiebig und perfekt leitend angenommen. Daher wird die Klebeschicht im FEM-Modell nicht berücksichtigt, sondern ein idealer Verbund vorausgesetzt. In diesem Fall gilt an der Grenzfläche zusätzlich $[\![\vec{u}]\!] = \vec{0}$. Die elektrischen und mechanischen Rand- und Übergangsbedingungen sind noch einmal zusammenfassend in Tab. 6.1 aufgeführt.

Wie im realen Versuchsaufbau verläuft die Grenzfläche zwischen den beiden Materialien, unten NBT-6BT und oben NBT-6BT-4KNN, normal zur z-Achse. Die Position der Grenzfläche in z-Richtung und somit auch die Volumenanteile der Materialien werden im FEM-Modell in 5 % Schritten gewählt. An den Kanten in x- und y-Richtung werden jeweils sechs und in z-Richtung 20 Elemente vorgegeben. Die Diskretisierung erfolgt dabei mit Tetraeder-Elementen und quadratischen Formfunktionen. Das resultierende Finite-Elemente-Netz unterscheidet sich für die verschiedenen Volumenzusammensetzungen je nach Lage der Grenzfläche leicht. In Abb. 6.1 ist ebenfalls die FEM-Vernetzung für 50 % V_{FE} dargestellt. Die Bezeichnung der Volumenzusammensetzung bezieht sich auf den Volumenanteil des Ferroelektrikums. Die Anzahl an Elementen beträgt darin ca. 5000. In der Grenzfläche weist die Vernetzung

übereinander liegende Knoten auf, die durch die genannten Übergangsbedingungen miteinander verknüpft werden.

Simulationen mit diesem Modell geben die realen Experimente bestmöglich wieder, erfordern jedoch trotz der Reduktion auf ein Viertel der realen Geometrie erhebliche Ressourcen und Rechenzeiten. Die freien Kanten und Oberflächen des Modells stimmen mit den realen Randbedingungen überein. Auf den freien Oberflächen der Komposite kann es im Bereich der Grenzfläche und an den Kanten, bedingt durch den Freien-Kanten-Effekt (engl. *free-edge-effect*) und den Freie-Ecken-Effekt (engl. *free-corner-effect*), zu Singulatitäten im mechanischen Spannungsfeld kommen [105, 106]. Diese können die Konvergenz des Gleichungslösers möglicherweise negativ beeinflussen.

6.1.2 Säulenmodell

Das nun vorgestellte FEM-Modell ist ein Ausschnitt aus einem in x- und y-Richtung unendlich ausgedehnten Zweilagenkomposit. In z-Richtung ist der Aufbau identisch zum Viertelmodell. Dieses Modell ist frei von möglichen Einflüssen der freien Ränder und von Singularitäten an Ecken und Kanten. Es verändert seinen Zustand nur über die z-Koordinate. Daher reicht es aus, eine Quadratsäule mit einer Höhe von $l_z = 4\,\text{mm}$ und der frei wählbaren lateralen Abmessung von $l_x = l_y = l_z/20$ zu betrachten. Dies ist in Abb. 6.2 dargestellt.

Für den PC-gekoppelten Komposit werden dieselben Rand- und Übergangsbedingungen wie im Viertelmodell verwendet. Für den PSC-gekoppelten Komposit wird ein idealer Biegezustand mit eben bleibenden Querschnitten angenommen, wie er aus der linearen Balken- und Schalentheorie bekannt ist. Dieser Zustand wird in den Ebenen $x = l_x$ und $y = l_y$ durch zusätzliche Zwangsbedingungen eingefordert. Dazu werden die zwei Referenzpunkte RP_1 und RP_2

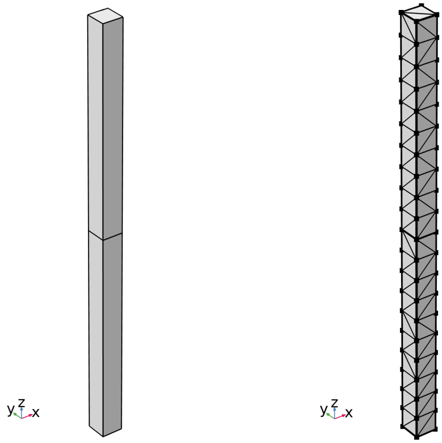


Abbildung 6.2: Geometrie (links) und Finite-Elemente-Netz (rechts) des Säulenmodells für 50 % V_{FE}.

mit den Koordinaten $\vec{x}_{RP_1} = [l_x \;\; l_Y \;\; l_z]^\mathsf{T}$ und $\vec{x}_{RP_2} = [l_x \;\; l_Y \;\; 0]^\mathsf{T}$ definiert und daraus die Zwangsbedingungen in x- und y-Richtung

$$u_1(l_x, l_y, z) - (u_{1,RP_1} - u_{1,RP_2})/l_z \cdot z + u_{1,RP_2} = 0 \tag{6.1}$$

$$u_2(l_x, l_y, z) - (u_{2,RP_1} - u_{2,RP_2})/l_z \cdot z + u_{2,RP_2} = 0 \tag{6.2}$$

abgeleitet.

Für die Diskretisierung des FEM-Modells werden an den Kanten in x- und y-Richtung jeweils ein Element und in z-Richtung 20 Elemente vorgegeben. Hierbei werden insgesamt 120 Tetraeder-Elemente mit quadratischen Formfunktionen verwendet. Wie auch beim Viertelmodell können die Volumenanteile somit in 5 % Schritten durch die Verschiebung der Grenzfläche vorgegeben werden. Die FEM-Vernetzung ist ebenfalls in Abb. 6.2 dargestellt. Durch die geringe Anzahl an Elementen benötigt die Berechnung des Säulenmodells nur geringe Ressourcen und Rechenzeiten. Dies ermöglicht die Durchführung

von Parameterstudien mit einer Vielzahl an Parameter-, Kopplungs- und Belastungsvariationen.

6.2 Vergleich Viertel- und Säulenmodell

Wie unterscheiden sich das Viertel- und das Säulenmodell bei der jeweiligen Kopplung? Um diese Frage zu beantworten, werden PC- und PSC-gekoppelte Zweilagenkomposite mit je 50 % Volumenanteil mit beiden FEM-Modellen simuliert und anhand der globalen $P-E$- und $S-E$-Hysteresen miteinander verglichen. Unter globalen Hysteresen wird hierbei die Auftragung der über der Oberflächen des Komposits gemittelten Feldgrößen über der extern aufgebrachten elektrischen Belastung verstanden. Für den Fall der reinen Polarisationskopplung ist zu erwarten, dass sich beide Modelle identisch verhalten. Ohne Dehnungskopplung entsteht keine Biegung und somit können keine Kräfte parallel zur Grenzfläche wirken, die Einfluss auf das globale Verhalten hätten. In den Abbildungen 6.3 und 6.4 wird dies bestätigt. Wie erwartet stimmen die $P-E$- als auch die $S-E$-Hysteresen perfekt überein.

Nun wird der Vergleich für den Fall der Polarisations- und Dehnungskopplung PSC untersucht. Die zugehörigen Hysteresen sind in den Abbildungen 6.5 und 6.6 dargestellt. Anders als vermutet, liegen auch hier alle Hysteresen nahezu perfekt übereinander und es sind nur minimale Abweichungen zu erkennen. Das Säulenmodell liefert somit für beide Kopplungsfälle hinreichend genaue Resultate. Im Gegensatz zum Viertelmodell benötigt es jedoch eine deutlich kürzere Simulationsdauer und weniger Speicherbedarf.

Wie unterscheiden sich die beiden Kopplungsarten bei den jeweiligen Modellen? Um diese Frage zu beantworten, werden zunächst die Hysteresen des Viertelmodells in den Abbildungen 6.7 und 6.8 betrachtet. Es sind nahezu keine Unterschiede in den $P-E$-, S_3-E- und S_1-E-Hysteresen vorhanden.

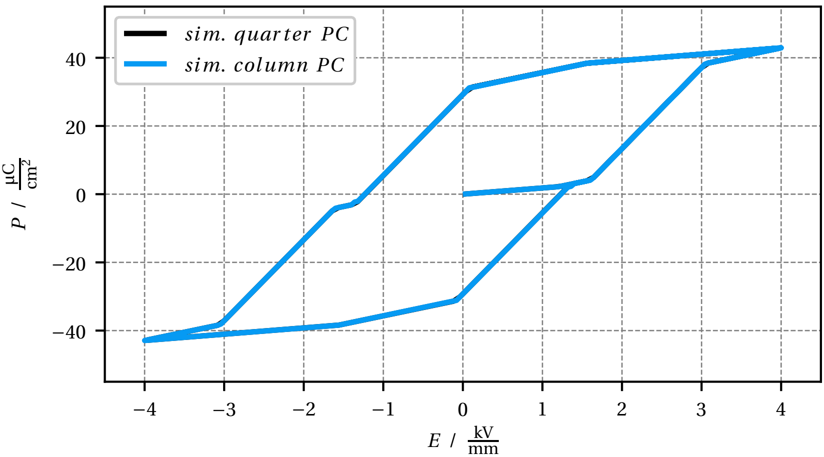


Abbildung 6.3: Vergleich zwischen Viertel- und Säulenmodell: Simulierte globale $P-E$-Hysteresen für den PC-gekoppelten Zweilagenkomposit mit 50 % V_{FE}.

Nun werden das Säulenmodell und dessen Hysteresen in den Abbildungen 6.9 und 6.10 begutachtet. Auch hier ist zu erkennen, dass sich die $P-E$-, S_3-E- und S_1-E- Hysteresen wie bereits beim Viertelmodell nur minimal unterscheiden.

Anhand dieser Vergleiche wird klar, dass die zusätzliche Dehnungskopplung sowohl im Viertel- als auch im Säulenmodell nahezu keinen Einfluss auf die globalen Hysteresen der Komposite aufweist. Der Großsignalkoeffizient d_{33}^*, der sich aus den S_3-E-Hysteresen berechnet, bleibt folglich durch die Dehnungskopplung nahezu unverändert. Der Einfluss der Dehnungskopplung auf den eher hypothetischen Fall eines Komposits ohne Berücksichtigung der Polarisationskopplung wird im Anhang D diskutiert. Hierbei verringert die Dehnungskopplung tendenziell die erreichbare Dehnung in Belastungsrichtung. Auf eine Berücksichtigung der realen, nachgiebigen Kleberschicht darf in den FEM-Modellen verzichtet werden: Die untersuchten Kopplungsfälle stellen einerseits einen vollständig nachgiebigen sowie andererseits einen starren

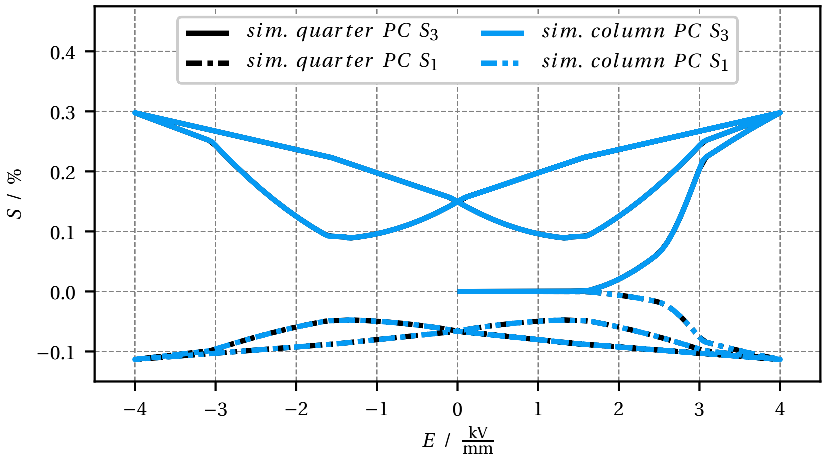


Abbildung 6.4: Vergleich zwischen Viertel- und Säulenmodell: Simulierte globale $S-E$-Hysteresen für den PC-gekoppelten Zweilagenkomposit mit 50 % V_{FE}.

Verbund dar und entsprechen somit den Extremwerten eines Klebers, ohne nennenswerte Unterschiede in den simulierten Hysteresen zu erzeugen. Die Dehnungskopplung und die dadurch verursachten mechanischen Spannungen können das globale Verhalten der Komposite kaum beeinflussen.

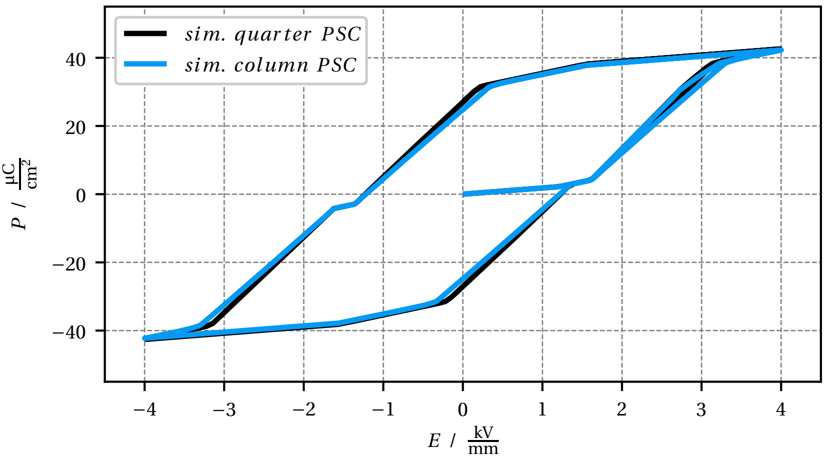


Abbildung 6.5: Vergleich zwischen Viertel- und Säulenmodell: Simulierte globale $P-E$-Hysteresen für den PSC-gekoppelten Zweilagenkomposit mit 50 % V_{FE}.

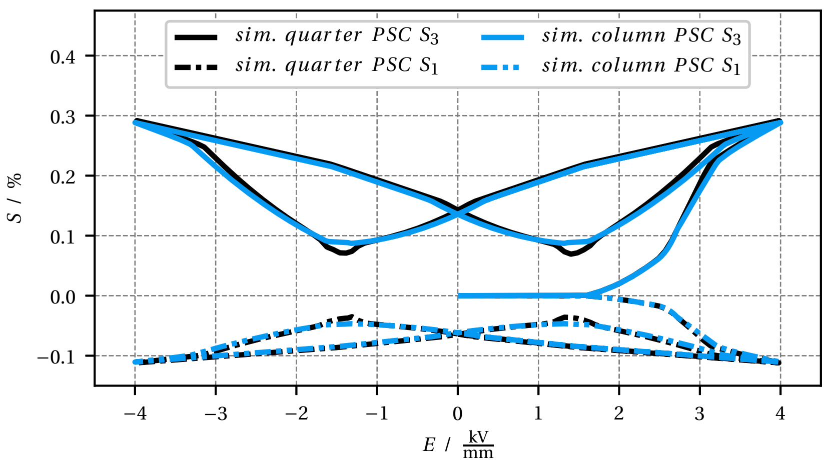


Abbildung 6.6: Vergleich zwischen Viertel- und Säulenmodell: Simulierte globale $S-E$-Hysteresen für den PSC-gekoppelten Zweilagenkomposit mit 50 % V_{FE}.

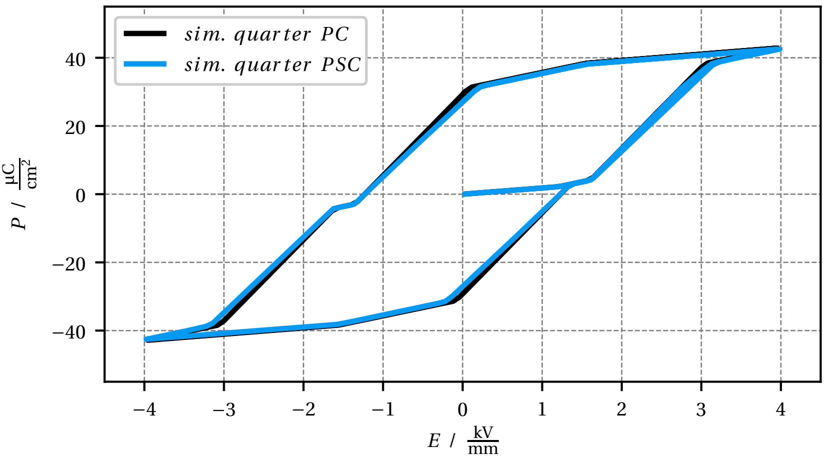


Abbildung 6.7: Vergleich zwischen PC- und PSC-gekoppeltem Viertelmodell: Simulierte globale $P-E$-Hysteresen des Zweilagenkomposits mit 50 % V_{FE}.

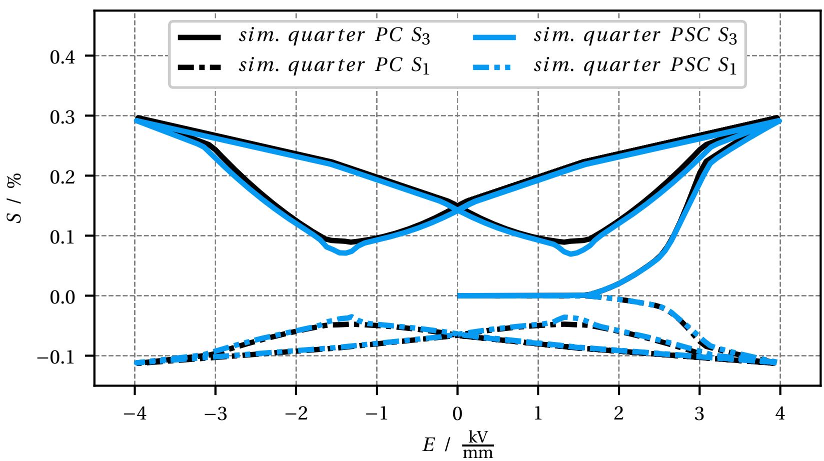


Abbildung 6.8: Vergleich zwischen PC- und PSC-gekoppeltem Viertelmodell: Simulierte globale $S-E$-Hysteresen des Zweilagenkomposits mit 50 % V_{FE}.

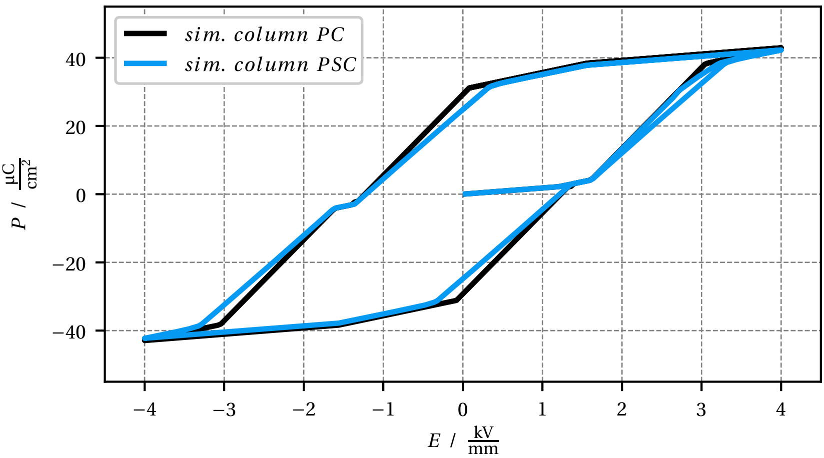


Abbildung 6.9: Vergleich zwischen PC- und PSC-gekoppeltem Säulenmodell: Simulierte globale $P-E$-Hysteresen des Zweilagenkomposits mit 50 % V_{FE}.

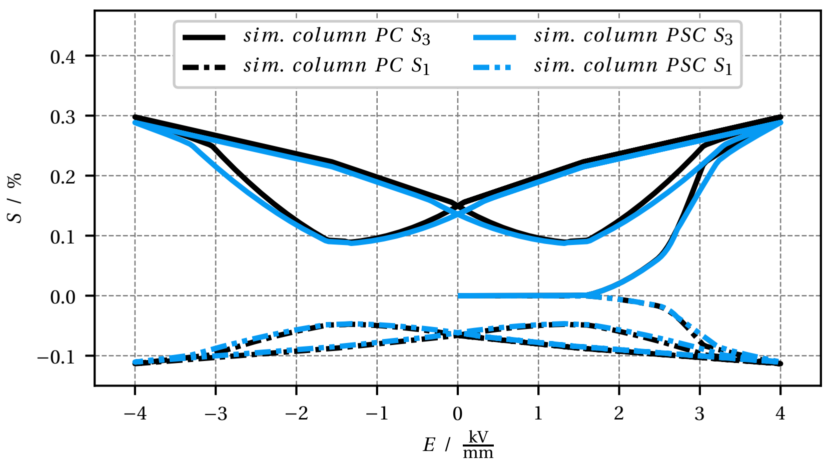


Abbildung 6.10: Vergleich zwischen PC- und PSC-gekoppeltem Säulenmodell: Simulierte globale $S-E$-Hysteresen des Zweilagenkomposits mit 50 % V_{FE}.

6.3 Vergleich zwischen Ausgangsmaterialien und Kompositen

In diesem Unterkapitel werden Hysteresen der am Viertelmodell simulierten PC- und PSC-gekoppelten Zweilagenkomposite mit 50 % V_{FE} Volumenanteil betrachtet und den Hysteresen der beiden Komponenten gegenübergestellt. In Abb. 6.11 sind die zugehörigen globalen $P-E$-Hysteresen analog zu Abb. 3.4 dargestellt. Wie bereits im vorherigen Unterkapitel diskutiert, stimmen die

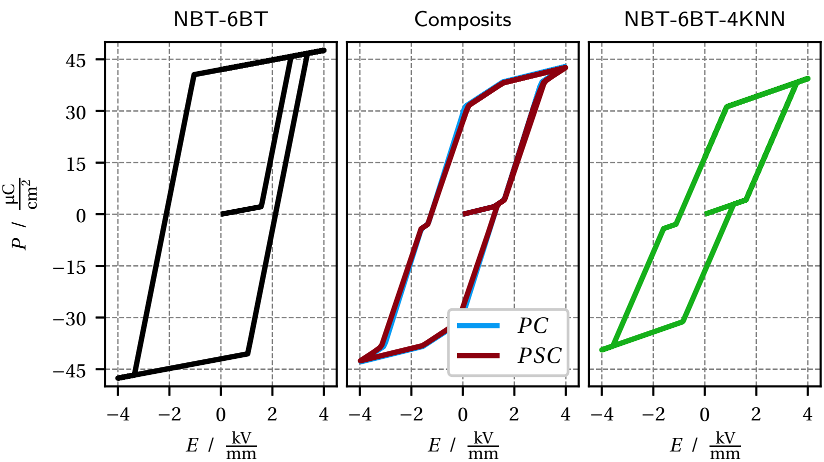


Abbildung 6.11: Vergleich der $P-E$-Hysteresen der Komponenten und der am Viertelmodell simulierten PC- und PSC-gekoppelten Zweilagenkomposite mit 50 % V_{FE}.

Hysteresen der PC- und PSC-gekoppelten Komposite nahezu perfekt überein. Im Vergleich zu den Komponenten zeigen die Komposite Hysteresen, die eher dem Relaxor Material NBT-6BT-4KNN ähneln. Es treten zusätzliche Knicke bei der Entlastung auf, die remanente Polarisation bei $E = 0$ kV/mm ist höher als bei NBT-6BT-4KNN und die extremale Polarisation bei $E = \pm 4$ kV/mm entspricht in etwa dem Mittelwert der Komponenten. Durch die Polarisationskopplung entspricht das Verhalten der Komposite der Komponente mit dem

geringeren irreversiblen Polarisationsvermögen. Die Zunahme der Polarisation gegenüber NBT-6BT-4KNN ist auf die Abweichung zwischen dem aufgebrachten und den lokal wirkenden elektrischen Feldern zurückzuführen.

Nun werden die über die jeweiligen Lagen gemittelten lokalen S_3- bzw. S_1-Dehnungen über der extern aufgebrachten elektrischen Belastung betrachten. Hierzu sind in Abb. 6.12 die lokalen $S_3 - E$- und $S_1 - E$-Dehnungshysteresen der Komposite sowie die Dehnungshysteresen der beiden Komponenten (engl. *end members*) dargestellt. In der oberen Reihe sind die Hysteresen des

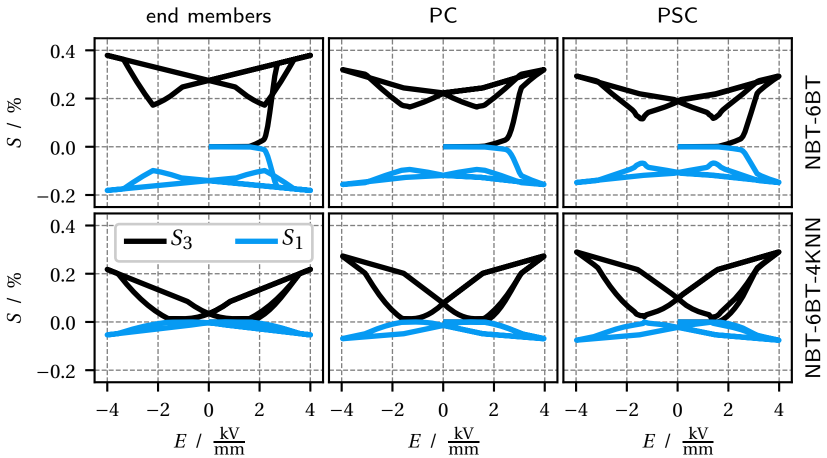


Abbildung 6.12: Vergleich der lokalen $S_3 - E$- und $S_1 - E$-Hysteresen der jeweiligen Lagen der am Viertelmodell simulierten PC- und PSC-gekoppelten Zweilagenkomposite mit 50 % V_{FE} sowie der beiden Komponenten.

Materials NBT-6BT aufgeführt. Im PC-gekoppelten Komposit sind gegenüber der reinen Komponente NBT-6BT eine Zunahme des Polungsfeldes sowie geringere Beträge der maximalen S_3- bzw. minimalen S_1-Dehnungen zu erkennen. Durch die Behinderung der Querdehnung im PSC-gekoppelten Komposit verringern sich die Beträge der maximalen bzw. minimalen Dehnungen weiter. In der unteren Reihe sind die Hysteresen des Materials NBT-6BT-4KNN

dargestellt. Hierbei ist ein zu NBT-6BT konträres Verhalten erkennbar. Die Beträge der maximalen bzw. minimalen Dehnungen sind für die reine Komponente NBT-6BT-4KNN am geringsten und nehmen für die PC- und PSC-gekoppelten Fälle zu. Anhand der Dehnungshysteresen lässt sich erkennen, dass die im Inneren des Komposits wirkenden elektrischen Felder aufgrund der Polarisationskopplung für NBT-6BT geringer und für NBT-6BT-4KNN höher als das nominale elektrische Feld sind.

Der Einfluss der Dehnungskopplung auf die Differenz der (gemittelten) Querdehnungen des Ferroelektrikums und des Relaxors

$$\Delta S = S_{1,FE} - S_{1,RE} \tag{6.3}$$

wird nun analog zu [78] betrachtet. Hierzu ist die Dehnungsdifferenz in Abb. 6.13 für die am Viertelmodell simulierten, PC- und PSC-gekoppelten Kom-

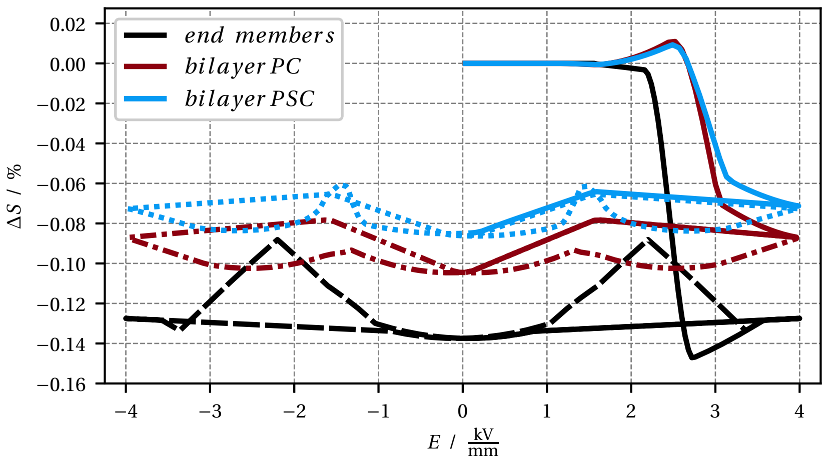


Abbildung 6.13: Differenz der Querdehnungen ΔS als Funktion der elektrischen Belastung E der Komponenten und der am Viertelmodell simulierten PC- und PSC-gekoppelten Zweilagenkomposite mit 50 % V_{FE} der Erstbelastung (durchgehende Linien) und der Wiederbelastung (unterbrochene Linien).

posite mit 50 % V_{FE} sowie für die separat belasteten Komponenten als „imaginärer Komposit“ in Abhängigkeit der aufgebrachten äußeren elektrischen Belastung dargestellt. Die durchgehenden und unterbrochenen Linien stehen für die erstmalige bzw. für die nachfolgende Belastung. Für die Erstbelastung der separat belasteten Komponenten lässt sich erkennen, dass das Ferroelektrikum ab 2.3 kV/mm eine deutlich stärkere Querdehnung als der Relaxor erfährt. Bei ca. ±2.8 kV/mm wird die minimale Querdehnungsdifferenz erreicht. Bei der weiteren Steigerung der Belastung ist eine Zunahme der Querdehnungsdifferenz (Abnahme der Absolutwerte) zu beobachten. Dies ist durch den internen Ordnungsübergang des Ferroelektrikums zu erklären. Bei der Entlastung verschwinden die Dehnungen des Relaxors und folglich nimmt die Dehnungsdifferenz bei 0 kV/mm den kleinsten Absolutwert an. Mit fortschreitender zyklischer Belastung werden ausgeprägte Maxima bei ca. ±2.2 kV/mm erreicht. Die simulierten PC- und PSC-gekoppelten Komposite zeigen quantitativ ähnliche Verläufe der Dehnungsdifferenz, jedoch überwiegen bis ca. 2.7 kV/mm die Querdehnungen des Relaxors und die minimalen Dehnungsdifferenzen haben höhere Absolutwerte. Die elektrische Belastung, die zum Abfallen der Dehnungsdifferenz führt, ist für die Komposite deutlich höher als für die beiden separat belasteten Komponenten. Dies kann ebenfalls der Abweichung zwischen der aufgebrachten elektrischen Belastung und den in den jeweiligen Lagen wirkenden inneren elektrischen Feldern zugeordnet werden, die durch die Polarisationskopplung bedingt ist. Die zusätzliche Dehnungskopplung bewirkt lediglich geringere Absolutwerte der Dehnungsdifferenz und ausgeprägtere Spitzen im Laufe der zyklischen Belastung.

6.4 Vergleiche zwischen Experimenten und FEM-Simulationen

Für die beiden Komponenten NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN wurde der Vergleich zwischen den Experimenten und den Simulationen bereits in Kap. 5.2

diskutiert. Mit dem Wissen, dass das entwickelte Materialmodell das Verhalten beider Werkstoffe sehr gut wiedergeben kann, wird nun das Verhalten des Zweilagenkomposits untersucht. Treten dabei nennenswerte Abweichungen zwischen den Experimenten und den Simulationen auf, so müssen diese entweder der Idealisierung der elektromechanischen Kopplung in den Simulationen oder der Methodik der experimentellen Untersuchung des Zweilagenkomposits entspringen.

6.4.1 Vergleich der globalen Hysteresen

Die experimentell ermittelten globalen Hysteresen der PC- und PSC-gekoppelten Zweilagenkomposite mit einem Volumenanteil von 50 % V_{FE} wurden bereits in Kap. 3.5 diskutiert. An dieser Stelle soll nun der Vergleich der globalen Hysteresen zwischen den Experimenten und den Viertel- und Säulenmodellen betrachtet werden. Zunächst wird der PC-gekoppelte Fall betrachtet, der in den Abbildungen 6.14 und 6.15 dargestellt ist. Darin ist zu erkennen, dass die Formen der $P-E$- und $S-E$-Hysteresen qualitativ gut zwischen dem Experiment und den Simulationen übereinstimmen, jedoch quantitative Abweichungen, besonders in den S_3-E-Hysteresen, zu beobachten sind.

Der Vergleich für den PSC-gekoppelten Fall ist in den Abbildungen 6.16 und 6.17 dargestellt. Die Übereinstimmung der $P-E$-Hysteresen hat sich im Fall der zusätzlichen Dehnungskopplung geringfügig verbessert. Die S_3-E- und S_1-E-Hysteresen stimmen nun sehr gut überein, wobei die Abweichungen im linken Bereich dieser Hysteresen auf das leicht unsymmetrische Verhalten des gemessenen Komposits beruhen.

In den FEM-Simulationen erreicht die Polarisation den im Vergleich zu den Experimenten für beide Kopplungsfälle betragsmäßig höheren Wert. Die Verzerrungskomponenten unterscheiden sich zwischen Simulation und Experiment nur für den PC-gekoppelten Fall maßgebend, stimmen jedoch für den

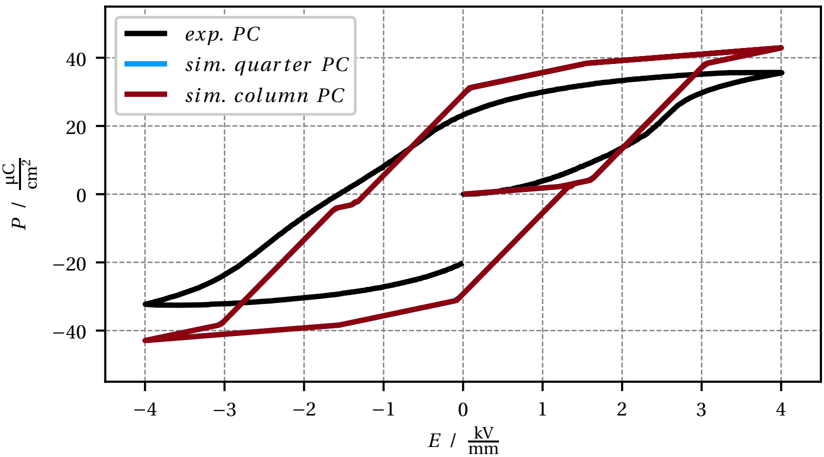


Abbildung 6.14: Vergleich zwischen Experiment und FEM-Modellen: Globale $P-E$-Hysteresen für den PC-gekoppelten Zweilagenkomposit mit 50 % V_{FE}.

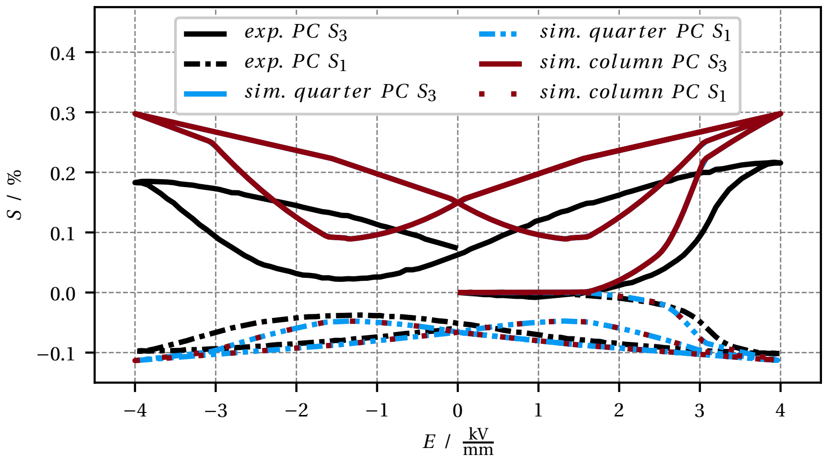


Abbildung 6.15: Vergleich zwischen Experiment und FEM-Modellen: Globale $S-E$-Hysteresen für den PC-gekoppelten Zweilagenkomposit mit 50 % V_{FE}.

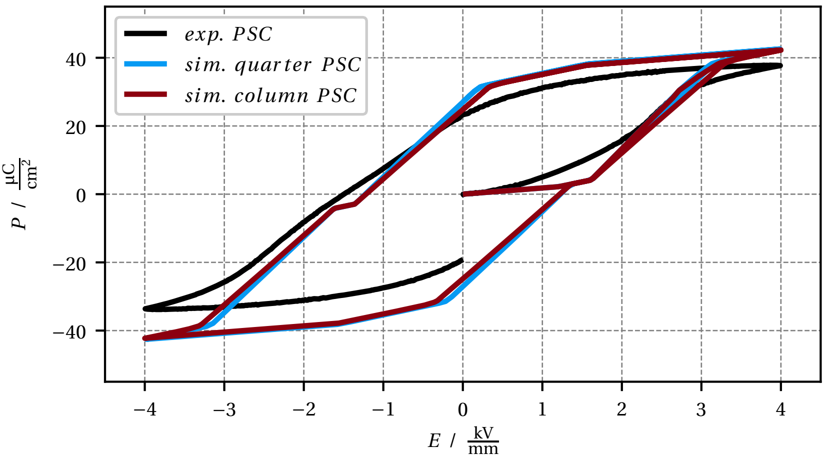


Abbildung 6.16: Vergleich zwischen Experiment und FEM-Modellen: Globale $P-E$-Hysteresen für den PSC-gekoppelten Zweilagenkomposit mit 50 % V_{FE}.

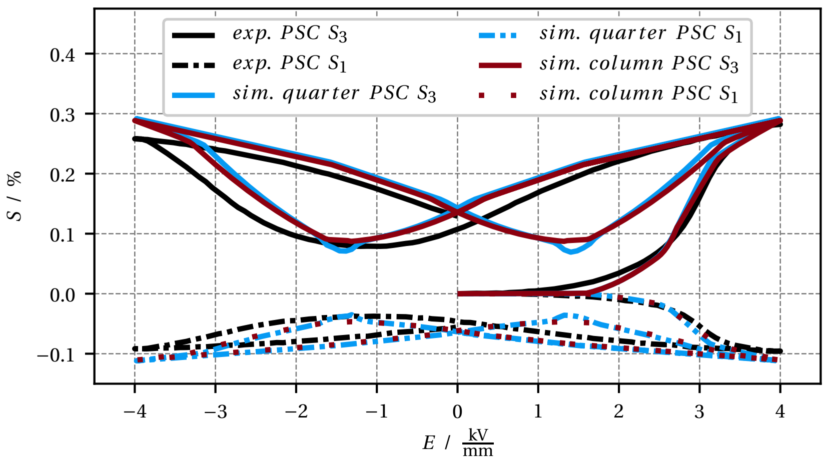


Abbildung 6.17: Vergleich zwischen Experiment und FEM-Modellen: Globale $S-E$-Hysteresen für den PSC-gekoppelten Zweilagenkomposit mit 50 % V_{FE}.

PSC-gekoppelten Fall nahezu überein. Wie können diese Abweichungen erklärt werden?

Im Komposit erfahren die Komponenten im Vergleich zum vorgegebenen elektrischen Feld, verursacht durch die Polarisationskopplung, deutlich höhere bzw. niedrigere elektrische Felder. Die interne Verteilung der elektrischen Felder wird im weiteren Verlauf dieses Kapitels untersucht. Durch die höheren Felder haben nichtlineare Effekte, die im Materialmodell nicht berücksichtigt sind, möglicherweise einen größeren Einfluss. Ebenso könnte die elektrische Leitfähigkeit einen höheren Einfluss haben. Weiterhin wird in den FEM-Simulationen ein idealer elektrischer Kontakt angenommen, der für den PC-gekoppelten Fall im Experiment, mangels elektrischer Leitpaste zwischen den Komponenten, möglicherweise nur unzureichend vorhanden ist. Dies zeigt sich anhand der deutlich geringeren S_3-Dehnung im Experiment. Aus Sicht der Simulation und der dahinter stehenden Theorie ist die annähernde Übereinstimmung der S_1-Dehnung zwischen Experiment und Simulation jedoch sehr gut zu erklären.

6.4.2 Vergleich der piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten

Analog zu Kap. 3.5.3 wird nun der für die Anwendung von Aktuatoren bedeutsame piezoelektrische Großsignalkoeffizient d_{33}^* anhand von simulierten Zweilagenkompositen mit veränderlichen Volumenanteilen untersucht. Hierbei wird das Viertelmodell mit PSC-Kopplung sowie das Säulenmodell mit PC- und PSC-Kopplung betrachtet. Die Volumenanteile werden dabei zu $V_{FE} \in [0\%, 10\%, ..., 100\%]$ gewählt, wobei 100 % und 0 % die reinen Komponenten NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN darstellen. Es wird eine zyklische unipolare elektrische Belastung, dargestellt in Abb. 6.18, mit einer maximalen Last von $E_{max} = 3.5$ bzw. $E_{max} = 4.0\,\text{kV/mm}$ aufgebracht.

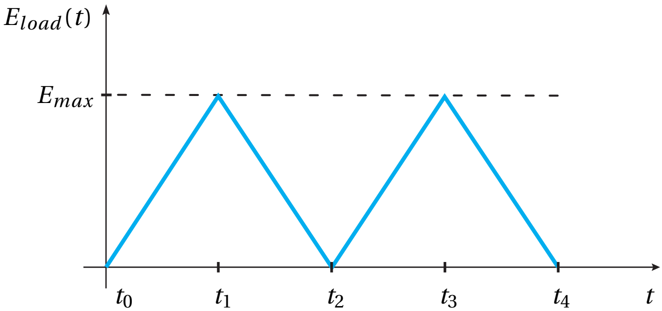


Abbildung 6.18: Zyklische unipolare elektrische Belastung

Die Bestimmung des Großsignalkoeffizienten ist bereits in Kap. 3.5.3 aufgeführt. Die Resultate für die Belastung $E_{max} = 3.5\,\text{kV/mm}$ sind in Abb. 6.19 dargestellt. Für die Belastung von $E_{max} = 4.0\,\text{kV/mm}$, dargestellt in Abb. 6.20, sind zusätzlich die verfügbaren experimentellen Werte mit aufgeführt. In diesen beiden Abbildungen lassen sich die folgenden Sachverhalte erkennen: Die d_{33}^* Werte der verschiedenen Simulationen verhalten sich unabhängig der Kopplungsarten nahezu gleich und nehmen linear mit steigendem Volumengehalt V_{FE} ab. Für die elektrische Belastung $E_{max} = 3.5\,\text{kV/mm}$ ist zu erkennen, dass sich die zusätzliche Dehnungskopplung sowohl auf das Viertel- als auch auf das Säulenmodell bei geringen Volumengehalten V_{FE} geringfügig negativ auswirkt. Bei 80 % V_{FE} weist sich die zusätzliche Dehnungskopplung hingegen geringfügig positiv aus.

Für die elektrische Belastung von $E_{max} = 4.0\,\text{kV/mm}$ verhalten sich die simulierten d_{33}^* Werte bis einschließlich 60 % V_{FE} perfekt linear, wobei das PSC-gekoppelte Säulenmodell minimal über den Werten der anderen Simulationen liegt. Es folgt bei 70 % V_{FE} ein Übergang, in dem sich die simulierten Werte deutlicher als bisher unterscheiden. Ab 80 % V_{FE} verhalten sich die Simulationen wieder linear und haben in etwa dieselben Werte.

Im Vergleich zu den experimentell ermittelten d_{33}^* Werten, die bereits in Kap. 3.5.3 diskutiert wurden, weisen die Simulationen zunächst eine vergleichbare

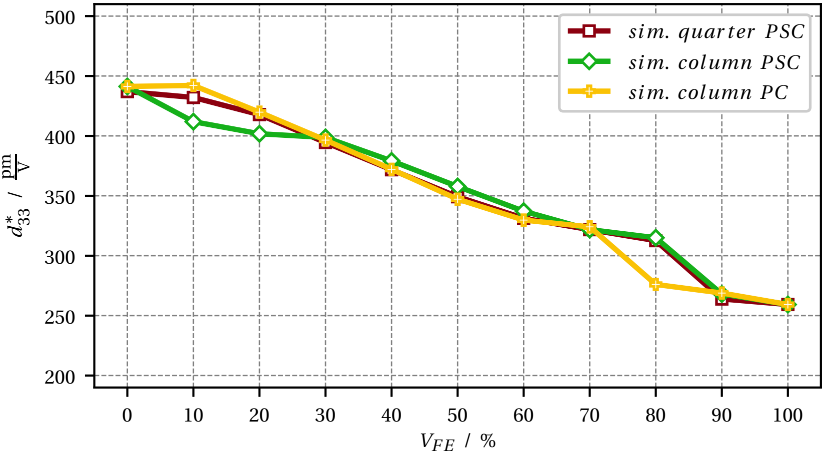


Abbildung 6.19: Vergleich $d_{33}^* - V_{FE}$ zwischen dem PC-gekoppelten Viertelmodell und den PC- und PSC-gekoppelten Säulenmodellen. $E_{max} = 3.5\,\mathrm{kV/mm}$.

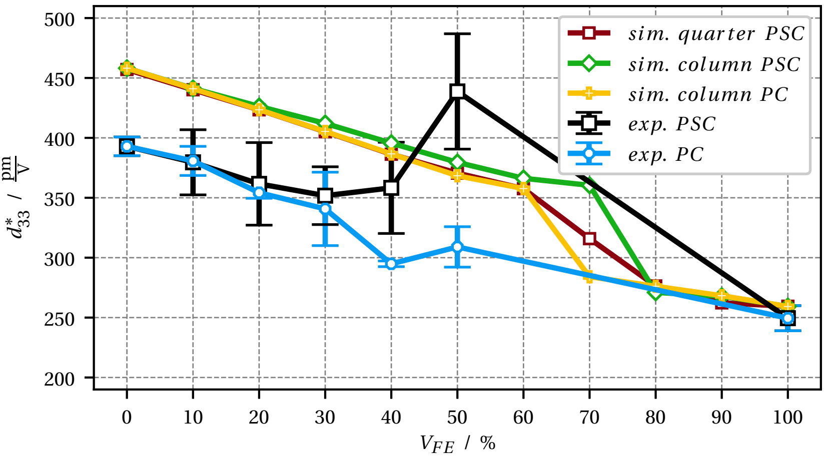


Abbildung 6.20: Vergleich $d_{33}^* - V_{FE}$ zwischen dem PC-gekoppelten Viertelmodell, den PC- und PSC-gekoppelten Säulenmodellen und den experimentell ermittelten Werten. $E_{max} = 4.0\,\mathrm{kV/mm}$.

Steigung, jedoch einen deutlichen Versatz von ca. 60 pm/V bzw. 15 % auf. Der anschließend experimentell beobachtete Überhöhungseffekt des realen PSC-gekoppelten Komposits, damit auch die bessere Performance des Komposits im Vergleich zu den einzelnen Bestandteilen, kann durch die durchgeführten Simulationen nicht reproduziert werden.

Woran könnte das liegen? Das entwickelte Materialmodell approximiert die $P-E$- und $T-S$-Hysteresen abschnittsweise linear und kann, wie bereits in Kap. 5.2 diskutiert, die Materialien NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN sehr gut beschreiben. In den Simulationen des Komposits könnte der sehr sensitive Charakter der durch die Materialparameter festgelegten approximativen Beschreibung der Hysteresen dem Überhöhungseffekt entgegen wirken. Kann der Überhöhungseffekt grundsätzlich durch Simulationen reproduziert werden? Zur Beantworten dieser Frage wird in Kap. 7 eine Parameterstudie durchgeführt.

6.4.3 Querdehnungsverteilung in Experiment und Simulation

In Kap. 3.5.2 wurde der Einfluss der Kopplungsart auf die experimentell ermittelte Querdehnungsverteilung über die Höhe eines Zweilagenkomposits mit gleichen Volumenanteilen diskutiert. Diese Diskussion soll nun, ergänzt durch Simulationsergebnisse, fortgeführt werden. Hier wird noch einmal erwähnt, dass die untersuchten Proben ein Höhe von 3.2 mm aufweisen. Das Viertelmodell wird für die folgenden Simulationen an diese Höhe angepasst. Zusätzlich werden die freien Oberflächen in 32 gleich hohe, horizontal ausgerichtete Streifen aufgeteilt. So können die Querdehnungen in den Simulationen analog zu den Experimenten ausgewertet werden. In Abb. 6.21 sind Geometrie und Vernetzung dargestellt. An den Kanten werden über die Hö-

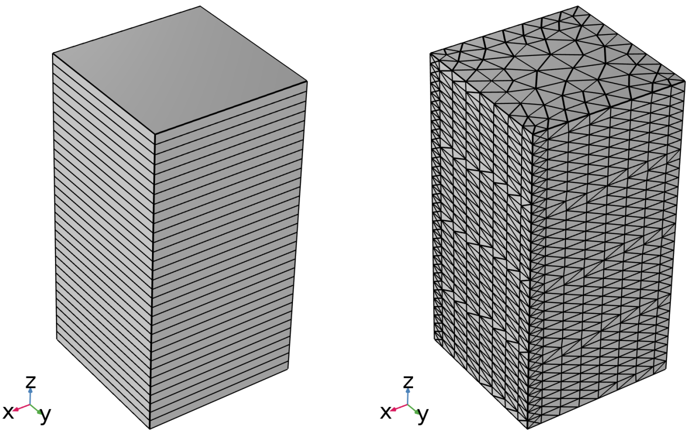


Abbildung 6.21: Geometrie (links) und Finite-Elemente-Netz (rechts) des modifizierten Viertelmodells mit Blick auf die freien Oberflächen.

he der Streifen jeweils ein Element und über die Breite acht Elemente vorgegeben. Insgesamt ergibt sich eine FEM-Diskretisierung mit ca. 7100 Elementen. Dieses Modell wird für beide Kopplungsarten mit einem elektrischen Feld von E_{max} = 4 kV/mm einmalig be- und entlastet. Die simulierten Querdehnungen werden analog zum Experiment über die Fläche der Streifen gemittelt und über die mittleren z-Koordinaten der Streifen dargestellt.

In Abb. 6.22 ist der Vergleich zwischen den Experimenten und den Simulationen für den Zeitpunkt t_1 der maximalen elektrischen Belastung von 4 kV/mm einschließlich der Mittelwerte dargestellt. Der simulierte PC-gekoppelte Komposit weist erwartungsgemäß eine in den Schichten konstante Verteilung auf. Im unteren Material, NBT-6BT, wird im Vergleich zum Experiment eine betragsmäßig höhere Dehnung erreicht. Im oberen Material, NBT-6BT-4KNN, stimmen Simulation und Experiment gut überein. Der simulierte PSC-gekoppelte Komposit weist eine S-förmige, im Bereich der Grenzfläche annähernd lineare Dehnungsverteilung auf. Auch für diesen Kopplungsfall werden in den

Simulationen im Vergleich zum Experiment in der unteren Schicht deutlich höhere betragsmäßige Dehnungen erreicht. Weiterhin lässt sich anhand der Krümmungen erkennen, dass der Einfluss der Dehnungskopplung in der Simulation über die gesamte Höhe des Komposits wirkt, im Experiment jedoch nur im Bereich der Grenzfläche. Die Mittelwerte der simulierten Komposite sind nahezu identisch, liegen jedoch deutlich von den Mittelwerten der Experimente entfernt. In Abb. 6.23 werden nun die verbleibenden, remanenten Querdehnungen nach der Entlastung zum Zeitpunkt t_2 verglichen. Es stellt sich eine vergleichbare Situation wie bei der maximalen elektrischen Belastung ein, jedoch mit betragsmäßig geringeren Querdehnungen. Dies gilt sowohl für die Simulationen als auch für die Experimente.

Nun stellt sich die Frage, wie sich die beobachteten Querdehnungen aus reversiblen und irreversiblen Dehnungen zusammensetzen. Experimentell kann dies nicht untersucht werden, jedoch kann in den Simulationsergebnissen auf diese Größen zurückgegriffen werden. Zunächst wird diese Zusammensetzung für den PC-gekoppelten Komposit bei 4 kV/mm zum Zeitpunkt t_1 in Abb. 6.24 betrachtet. Darin ist zu erkennen, dass sich die totale Dehnung S_1 aus der reversiblen S_1^r und der polarisationsinduzierten irreversiblen Dehnung S_1^{ip} zusammensetzt. Die mechanisch induzierte Querdehnung S_1^{im} hat keinen Anteil, da die auftretenden Spannungen nicht zur Erfüllung des mechanischen Umklappkriteriums ausreichen. In der oberen Lage, NBT-6BT-4KNN, besteht die totale Dehnung nahezu ausschließlich aus der reversiblen Dehnung. In der unteren Lage, NBT-6BT, verhält es sich umgekehrt, die polarisationsinduzierte Dehnung überwiegt den reversiblen Anteil um ein Vielfaches. Wird nun der entlastete Zustand des PC-gekoppelten Komposits zum Zeitpunkt t_2 in Abb. 6.25 betrachtet, so können folgenden Veränderungen beobachtet werden: Die reversiblen und somit die totalen Querdehnungen gehen durch die Verringerung der elektrischen Belastung in beiden Materialien deutlich zurück. Die irreversiblen Querdehnungen bleiben nahezu vollständig im Material erhalten. Weiterhin ist zu beobachten, dass die reversible Dehnung in den beiden Schichten entgegengesetzte Vorzeichen besitzt. Dies ist ein Indiz dafür, dass das elektrische Feld ebenfalls das Vorzeichen wechselt.

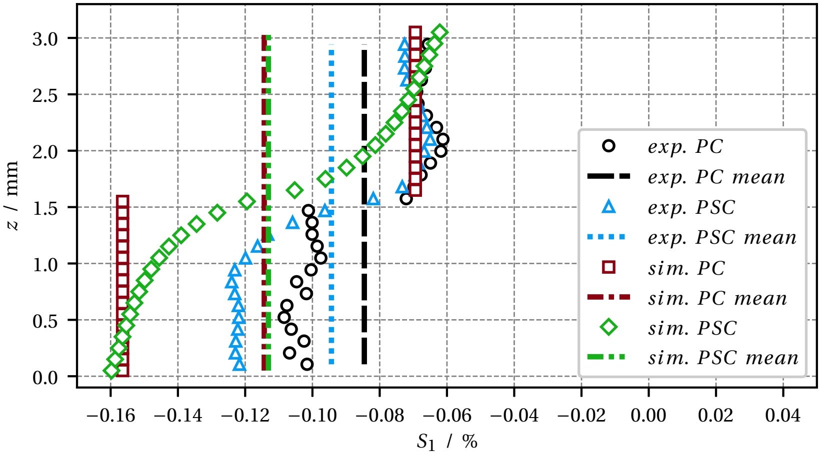


Abbildung 6.22: Vergleich zwischen experimentell ermittelten und simulierten Querdehnungsverteilungen und deren Mittelwerten für den PC- und PSC-gekoppelten Zweilagenkomposit zum Zeitpunkt t_1.

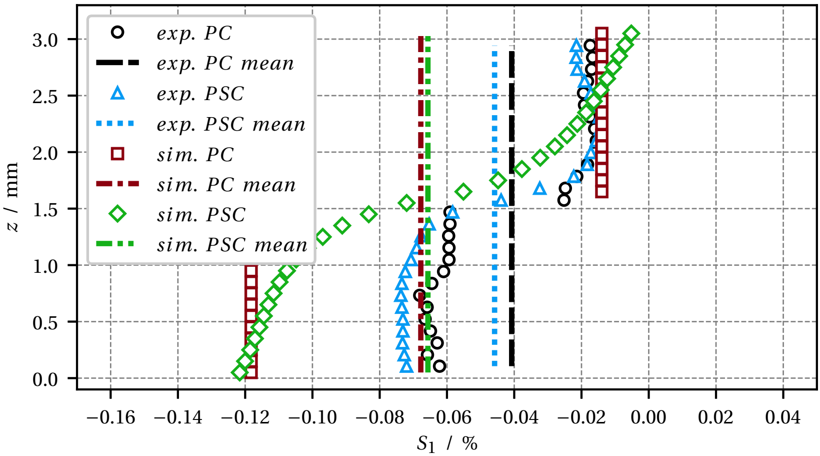


Abbildung 6.23: Vergleich zwischen experimentell ermittelten und simulierten Querdehnungsverteilungen und deren Mittelwerten für den PC- und PSC-gekoppelten Zweilagenkomposit zum Zeitpunkt t_2.

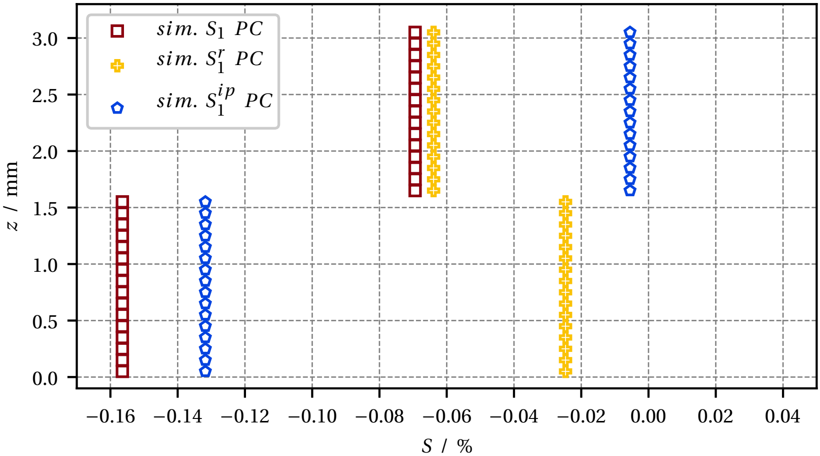


Abbildung 6.24: Vergleich der simulierten totalen, reversiblen und irreversiblen Querdehnungsverteilungen für den PC-gekoppelten Zweilagenkomposit zum Zeitpunkt t_1. $S_3^{im} \equiv 0$, daher nicht dargestellt.

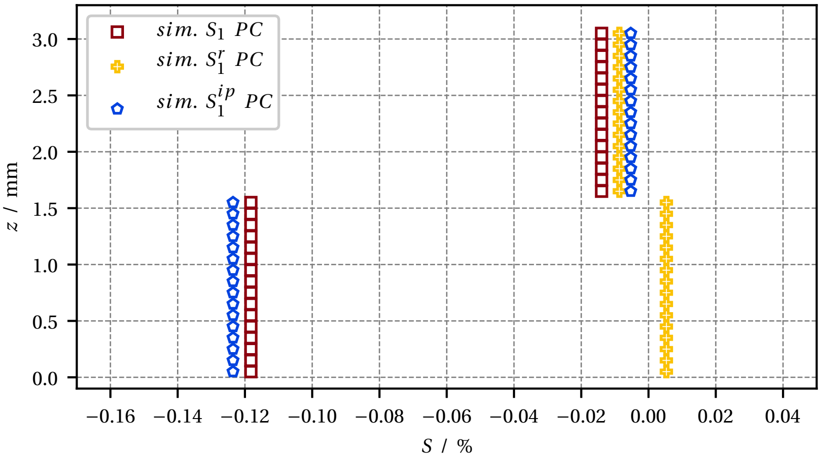


Abbildung 6.25: Vergleich der simulierten totalen, reversiblen und irreversiblen Querdehnungsverteilungen für den PC-gekoppelten Zweilagenkomposit zum Zeitpunkt t_2. $S_3^{im} \equiv 0$, daher nicht dargestellt.

Nun werden die gleichen Überlegungen am PSC-gekoppelten Komposit angestellt. Hierbei ist aufgrund der zusätzlichen Dehnungskopplung eine kontinuierliche Dehnungsverteilung über die Grenzfläche hinweg zu erwarten. In Abb. 6.26 ist die Zusammensetzung der Querdehnungen bei maximaler elektrischer Belastung, Zeitpunkt t_1, dargestellt. Wie bereits diskutiert, weist

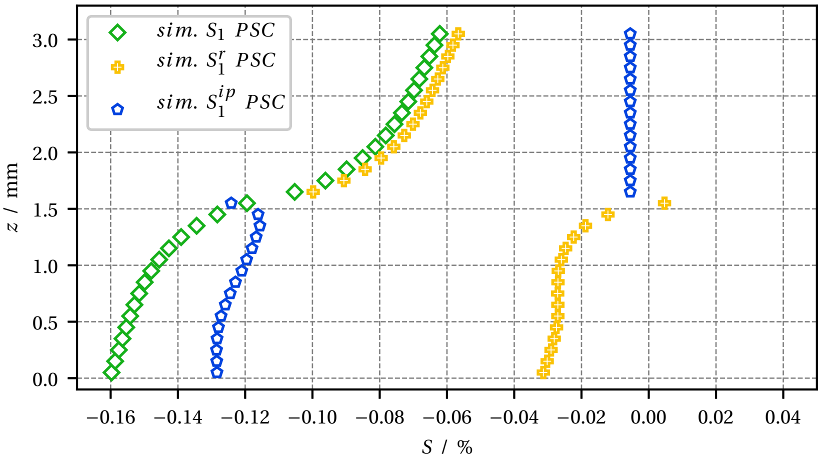


Abbildung 6.26: Vergleich der simulierten totalen, reversiblen und irreversiblen Querdehnungsverteilungen für den PSC-gekoppelten Zweilagenkomposit zum Zeitpunkt t_1. $S_3^{im} \equiv 0$, daher nicht dargestellt.

die totale Querdehnung aufgrund der zusätzlichen Dehnungskopplung einen leicht S-förmigen Verlauf auf. In der oberen Lage entspricht die reversible Dehnung analog zur PC-Kopplung nahezu der totalen Dehnung. Die polarisationsinduzierte irreversible Dehnung erreicht die Sättigungsdehnung und ist über die Schichtdicke konstant. In der unteren Lage überwiegt die polarisationsinduzierte irreversible Dehnung deutlich. Die Verteilung ist zunächst konstant, nimmt dann von der unteren Kante über die Schichtdicke betragsmäßig leicht ab, steigt jedoch zur Grenzfläche wieder an. Dabei bleiben die Extremwerte unterhalb der Sättigungsdehnung. Die reversible Dehnung nimmt mit der Höhe zunächst (betragsmäßig) moderat ab, bleibt im mittleren Drittel in

etwa konstant und nimmt dann deutlich nichtlinear ab. Nahe an der Grenzfläche erreicht diese sogar einen positiven Wert. Nach der elektrischen Entlastung zum Zeitpunkt t_2, dargestellt in Abb. 6.27, verbleibt eine totale Quer-

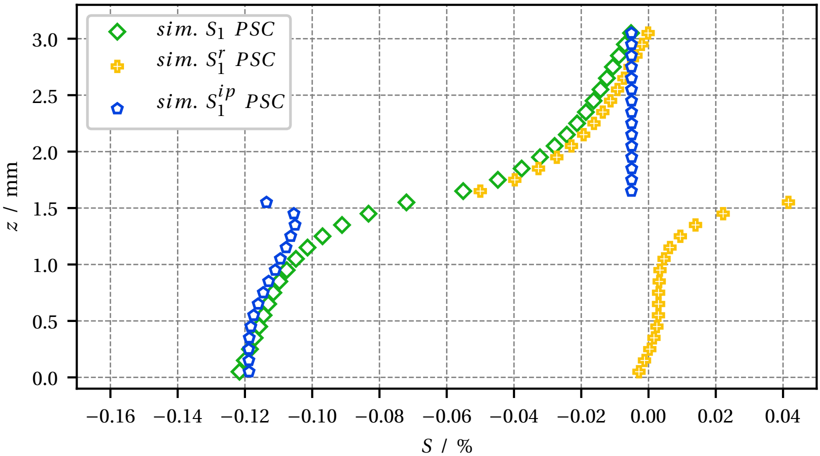


Abbildung 6.27: Vergleich der simulierten totalen, reversiblen und irreversiblen Querdehnungsverteilungen für den PSC-gekoppelten Zweilagenkomposit zum Zeitpunkt t_2. $S_3^{im} \equiv 0$, daher nicht dargestellt.

dehnungsverteilung, deren Form im Vergleich zur maximalen Belastung unverändert ist, deren Werte jedoch (betragsmäßig) deutlich geringer sind. Die polarisationsinduzierte irreversible Querdehnung bleibt nahezu unverändert. Um dies zu kompensieren, weist die reversible Dehnung überwiegend positive und zur Grenzfläche stark zunehmende Werte auf. Auch mit der zusätzlichen Dehnungskopplung treten keine mechanisch induzierten irreversiblen Dehnungen auf. Die polarisationsinduzierten irreversiblen Dehnungen bleiben nach der Entlastung nahezu vollständig vorhanden. Die inneren elektrischen Felder weichen vom extern vorgegebenen Feld ab. Der untersuchte Komposit mit je 50 % Volumenanteil erreicht daher im oberen Material NBT-6BT-4KNN die Sättigungspolarisation, im unteren Material NBT-6BT jedoch nicht. Durch die zusätzliche Dehnungskopplung zeigen die S_1^r- und S_1^{ip}-Dehnungen an der

Grenzfläche ein gegenläufiges Verhalten. Im Vergleich zu den Experimenten werden in den Simulationen für beide Kopplungsarten in der unteren Schicht (betragsmäßig) deutlich höhere Querdehnungen erreicht. Durch die Simulationen ist zu erkennen, dass die Verklebung im Experiment keine ideale Dehnungskopplung darstellt. Die verbleibenden reversiblen Dehnungen, die nach der äußeren Entlastung verbleiben, lassen auf die Existenz von Potential und elektrischen Feldern im Inneren des Komposits schließen.

Ob dies wirklich der Fall ist, soll nun untersucht werden. Dazu werden die Verteilungen der Feldgrößen φ, E_3, P_3 und T_1 entlang der zentralen z-Achse des Viertelmodells und somit über die Höhe der Komposite zu den Zeitpunkten t_1 und t_2, also bei maximaler Belastung und nach der Entlastung betrachtet. Diese sind in Abb. 6.28 für die PC- (links) und PSC- (rechts) Kopplung dargestellt. Zunächst wird auf den lediglich PC-gekoppelten Komposit eingegangen. Über die Höhe ist ein stückweise linearer, stetiger Verlauf des Potentials zu erkennen. Nach der Entlastung, zum Zeitpunkt t_2, verbleibt im Inneren des Komposits Potential, das ein Maximum an der Grenzfläche annimmt. Das elektrische Feld ist über die Höhe der Komponenten konstant, entspricht aber nicht der extern vorgegebenen Belastung. Nach der äußeren Entlastung verbleiben im Komposit bemerkenswert hohe elektrische Felder von ca. $\pm 0.8\,\mathrm{kV/mm}$. Die Polarisation ist für beide Zeitpunkte, bedingt durch die Polarisationskopplung, über die gesamte Höhe des Komposits konstant. Im PC-gekoppelten Komposit wirken keine Spannungen, da die Ausdehnung nicht behindert wird. Somit ist die Spannung zu den beiden Zeitpunkten identisch Null. Durch die zusätzliche Dehnungskopplung werden nichtlineare bzw. nichtkonstante Verläufe der Feldgrößen über die Höhe des Komposits verursacht. Für das Potential und die Polarisation weichen diese nur geringfügig vom stückweise linearen bzw. konstanten Verhalten ab. Das Potential weist nun einen ausgerundeten Bauch auf, dessen Maximum zum Zeitpunkt t_2 nun unterhalb der Grenzfläche liegt. Die Werte der Polarisation verändern sich durch die zusätzliche Dehnungskopplung nur zum Zeitpunkt t_2. Für das elektrische Feld und die mechanische Spannung ändert sich der Verlauf deutlich. Die elektrischen Felder nähern sich an der Grenzfläche einander an, an den Rändern ist nahezu keine

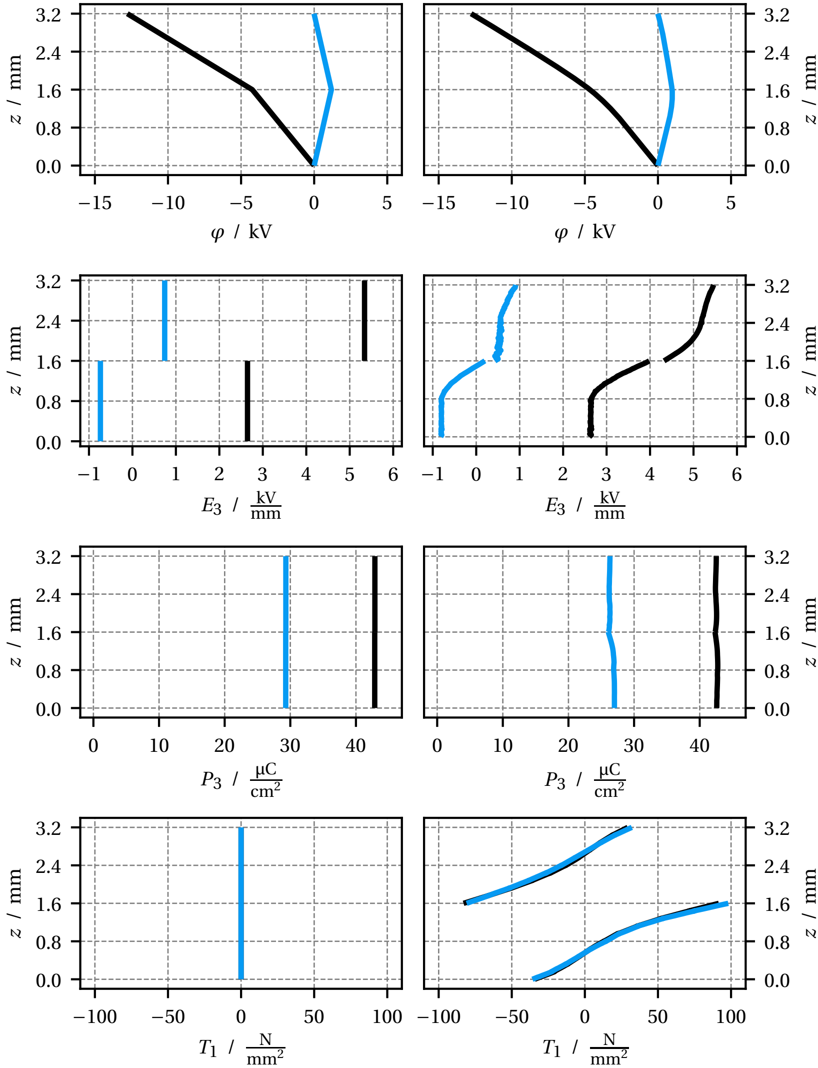


Abbildung 6.28: Darstellung $z-\varphi$, $z-E_3$, $z-P_3$ und $z-T_1$ für die PC- (links) und PSC- (rechts) gekoppelten Komposite zu den Zeitpunkten t_1 (schwarz) und t_2 (blau).

Veränderung zu beobachten. Die mechanischen Spannungen verhalten sich nun in etwa abschnittsweise linear und für beide untersuchten Zeitpunkte nahezu identisch. Beidseits der Grenzfläche weichen die Beträge der Spannungen voneinander ab, da sich die zugehörigen, von der irreversiblen Polarisation induzierten Querdehnungen sowie die Materialparameter unterscheiden. Nun stellt sich die Frage, welchen Einfluss die elektrische Leitfähigkeit auf die verschieden gekoppelten Komposite und deren Verteilung der inneren Feldgrößen hat. Diese Frage wird im nächsten Abschnitt untersucht.

6.5 Einfluss der elektrischen Leitfähigkeit auf die Komposite

Wie in dem vorherigen Beispiel zu sehen ist, verbleiben in den simulierten Zweilagenkompositen nach dem Polungsvorgang reversible Dehnungen, die durch eine verbleibende Potentialverteilung und folglich durch elektrische Felder verursacht werden. In den realen Kompositen wird dies ebenfalls vermutet, jedoch relaxiert das Potential dort trotz der sehr geringen Leitfähigkeiten im Laufe der Zeit und baut sich mit der Zeit ab. Mit den vorhandenen experimentellen Daten kann dies nicht hinreichend beurteilt werden. Im Allgemeinen ist die experimentelle Erfassung der räumlich und zeitlich veränderlichen inneren Zustände sehr aufwendig bzw. unmöglich. Somit wird der Einfluss der elektrischen Leitfähigkeit nun anhand von Simulationen untersucht. Im entwickelten ferroelektrischen Materialmodell wird die Relaxation des Potentials durch die elektrische Leitfähigkeit und die Permittivität beeinflusst. In den Simulationen wird dafür erstmals in dieser Arbeit die gemischte Finite-Elemente-Formulierung nach den Gleichungen (2.61) - (2.63) verwendet, die die Leitfähigkeit berücksichtigt. Daher ist nun eine Ratenabhängigkeit im FEM-Modell vorhanden.

Für einen zweilagigen Komposit, bestehend aus Materialien mit isotropen und konstanten dielektrischen Eigenschaften ohne Kopplung zur Mechanik ($\vec{P}^i = \vec{0}$ und folglich auch $\mathbb{d} : \boldsymbol{T} = \vec{0}$), kann zur Überprüfung der Implementierung des Materialmodells eine eindimensionale analytische Lösung zum Vergleich heran gezogen werden. Diese ist aus [75] entnommen und im Anhang C aufgeführt. Die Implementierung wird nun anhand des Säulenmodells mit dieser Lösung verglichen. Die dafür benötigten Materialparameter $\varepsilon = \varepsilon_0 + \kappa^T$ und σ entsprechen denen von NBT-6BT (unten) und NBT-6BT-4KNN (oben). Es werden zwei verschiedene Volumenzusammensetzungen mit 50 % V_{FE} bzw. 70 % V_{FE} untersucht. Dazu werden die Dicke der Lagen zu $l_u = l_o = 2\,\text{mm}$ bzw. $l_u = 2.8\,\text{mm}$ und $l_o = 1.2\,\text{mm}$ gewählt. Die Aufbringung der elektrischen Belastung erfolgt analog zum Säulenmodell. Der zeitliche Verlauf der vorgegebenen elektrischen Belastung stellt eine lineare Approximation der Sprungfunktion mit maximal 4 kV/mm dar. Bei der Berechnung wird die vorhandene Implementierung lediglich durch festes Vorgeben von $\vec{P}^i = \vec{0}$ modifiziert. Somit ist die elektromechanische Kopplung deaktiviert. In Abb. 6.29 sind die aufgebrachten elektrischen Belastungen sowie die lokalen elektrischen Feldstärken in den beiden Schichten über der Zeit dargestellt. Darin ist ersichtlich, dass sich die inneren elektrischen Feldstärken, E_o oben und E_u unten, im Laufe der Zeit deutlich verändern und nicht mit der vorgegebenen äußeren Belastung E_{ext} übereinstimmen. Die elektrischen Felder der Simulationen stimmen für beide Volumenzusammensetzungen perfekt mit den analytischen Lösungen, $E_{o,an.}$ und $E_{u,an.}$ überein. Somit ist die Implementierung im Hinblick auf die elektrische Leitfähigkeit, zumindest für rein dielektrische Materialien, erfolgreich verifiziert. Dennoch werden die beiden Abbildungen noch einmal genauer betrachtet. Der Komposit mit 50 % V_{FE} Volumenanteil weist eine innere Verteilung der elektrischen Feldstärken auf, deren Mittelwert der vorgegebenen Feldstärke entspricht. Die lokale Feldstärke ist zu Beginn in der unteren Lage höher als in der oberen Lage, dann verringern (unten) bzw. erhöhen (oben) sich die inneren Feldstärken sehr stark und nach kurzer Zeit dreht sich das Größenverhältnis um. Im weiteren Verlauf ändern sich die Feldstärken immer langsamer, bis schließlich annähernd stationäre Zustände erreicht werden.

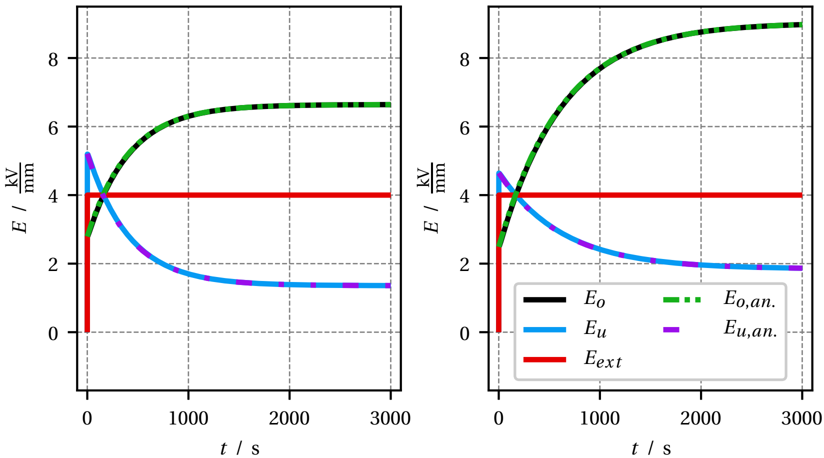


Abbildung 6.29: Aufgebrachtes elektrisches Feld E_{ext} sowie der Vergleich zwischen Simulation und analytischer Lösung der zeitlich veränderlichen inneren elektrischen Feldstärken der oberen und unteren Lage bei 50 % V_{FE} (links) und 70 % V_{FE} (rechts).

Für den Komposit mit 70 % V_{FE} Volumenanteil lassen sich prinzipiell dieselben Beobachtungen machen, jedoch entspricht der Mittelwert der beobachteten inneren Feldstärken nicht mehr der vorgegebenen Feldstärke. Direkt nach Aufbringung der Belastung sind die lokalen Feldstärken, im Vergleich zum Komposit mit 50 % V_{FE}, zunächst geringer, mit fortschreitender Zeit jedoch in der oberen Lage deutlich höher. Diese Lage erfährt im Laufe der Zeit ein äußerst hohes elektrisches Feld, das die aufgebrachte elektrische Belastung um mehr als das Doppelte übersteigt. Dies ist durch die Kombinationen der Schichtdicken mit den Leitfähigkeiten und den Permittivitäten der beiden Lagen zu erklären.

Nach der Verifikation der Implementierung wird der Einfluss der Leitfähigkeit, unter Berücksichtigung der durch die Evolution der irreversiblen Polarisation begründeten Nichtlinearität, anhand des im Abschnitt 6.4.3 vorgestellten modifizierten Viertelmodells, untersucht. Hierbei soll gezeigt werden, wie

sich die Felder im Inneren des Komposits im Laufe der Zeit verändern. Dazu werden die PC- und PSC-gekoppelten Komposite mit je 50 % V_{FE} Volumenanteil wie im Experiment zwischen $t_0 = 0\,\mathrm{s}$ und $t_1 = 2.5\,\mathrm{s}$ mit einer Rate von $\pm 1.6\,\mathrm{kV/(mm\,s)}$ bis maximal $4\,\mathrm{kV/mm}$ elektrisch be- und bis $t_2 = 5.0\,\mathrm{s}$ wieder entlastet. Im Anschluss daran wird das Potential in der Simulation bis zum Erreichen von $t_3 = 1 \cdot 10^4\,\mathrm{s}$ an den oberen und unteren Flächen zu Null gesetzt und somit kurzgeschlossen. Die mechanischen Randbedingungen bleiben dabei unverändert.

Die Evolution des Potentials φ, des elektrischen Feldes E_3, der Polarisation P_3 und der mechanischen Spannung T_1 sind in Abb. 6.30 für die Komposite mit PC-und PSC-Kopplung dargestellt. Die dargestellten Größen sind nicht über eine Querschnittsfläche gemittelt, sondern an bestimmten z-Koordinaten der zentralen Achse des Viertelmodells entnommen: RE_{top} an der Oberseite, RE_{int} sowie FE_{int} auf der Grenzfläche und FE_{bottom} an der Unterseite des Komposits. Dies stellt nur für die PSC-Kopplung eine Restriktion dar, da die Größen bei der PC-Kopplung über die Ausdehnungen in x- und y-Richtung konstant sind. Für beide Kopplungsarten ist der Einfluss der elektrischen Leitfähigkeit eindeutig zu erkennen.

Für den PC-gekoppelten Komposit, linke Seite in Abb. 6.30, lassen sich folgende Sachverhalte beobachten: Potential, elektrisches Feld und Polarisation erreichen beim Polungsvorgang betragsmäßig deutlich höhere Werte als anschließend verbleiben. Die verbleibenden Größen verändern sich zunächst schnell, im Laufe der Zeit jedoch immer langsamer bis annähernd horizontale Tangenten und damit stationäre Zustände erreicht werden. Das Potential entspricht an der Ober- und Unterseite des Komposits der aufgebrachten Belastung. Im Inneren des Komposits stimmen die nach der Entlastung verbleibenden Potentiale ober- und unterhalb der Grenzfläche überein und verschwinden mit der Zeit. Die elektrischen Felder sind in den Schichten konstant und die entsprechenden Kurven liegen daher übereinander. Nach dem Polungsvorgang verbleiben in etwa betragsmäßig gleich hohe, jedoch entgegengesetzte Felder, die analog zum Potential im Laufe der Zeit verschwinden.

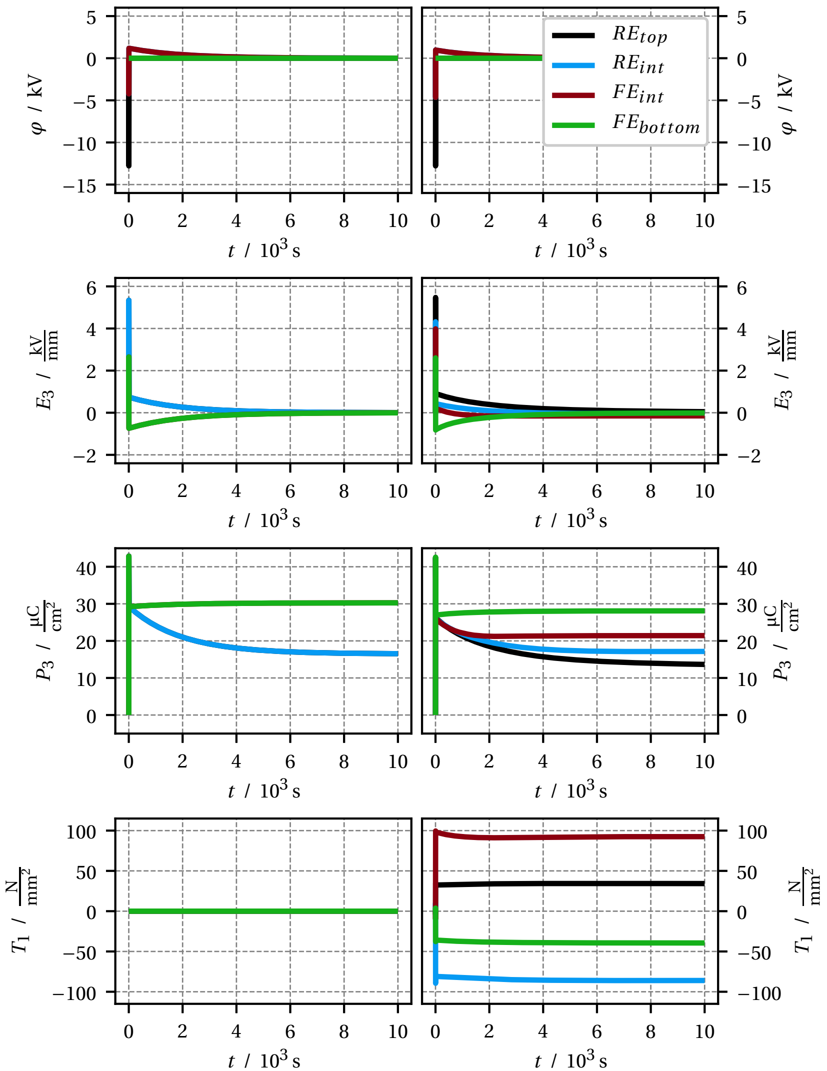


Abbildung 6.30: Evolution von φ, E_3, P_3 und T_1 unter Berücksichtigung der elektrischen Leitfähigkeit für den PC- (links) und den PSC- (rechts) gekoppelten Zweilagenkomposit.

Im Gegensatz zum Potential und zum elektrischen Feld zeigt die Polarisation ein anderes Verhalten. Während und direkt nach dem Polungsvorgang stimmen die Werte bedingt durch die Polarisationskopplung im gesamten Komposit überein. Mit der Zeit nimmt die Polarisation im Ferroelektrikum minimal zu, im Relaxor verringert sich die Polarisation jedoch um etwa die Hälfte. Dabei scheint selbst nach der langen Haltezeit noch kein stationärer Zustand erreicht zu sein. Die Polarisationsdifferenz an der Grenzfläche entspricht der angelagerten Grenzflächenladungsdichte. Die mechanische Spannung ist mangels Dehnungskopplung an allen Positionen Null und folglich ist keine Evolution zu beobachten.

Für den PSC-gekoppelten Komposit, rechte Seite in Abb. 6.30, lassen sich vergleichbare Sachverhalte beobachten, jedoch unterscheiden sich nun die Größen innerhalb der Schichten aufgrund der zusätzlichen Dehnungskopplung. Nach der Entlastung ist das elektrische Feld an der unteren Seite des Ferroelektrikums negativ, an der oberen Seite und im Relaxor positiv und nähert sich je nach Höhe unterschiedlich schnell dem Wert Null an. Die Polarisation steigt nach der Entlastung an der Oberseite des Relaxors minimal an, an der Unterseite verringert sie sich zunächst, steigt im weiteren Verlauf jedoch wieder minimal an. Im Ferroelektrikum verringert sich die Polarisation an der Ober- und Unterseite unterschiedlich stark. Durch die Dehnungskopplung sind nun Spannungen im Komposit vorhanden, die an der Grenzfläche in etwa gleiche Beträge, jedoch entgegengesetzte Vorzeichen aufweisen. Es ist während der Haltezeit ein geringer Einfluss der elektrischen Leitfähigkeit auf die Spannung erkennbar.

Nun wird der Einfluss der Leitfähigkeit auf die Dehnungen untersucht. Wie bereits diskutiert, sind die Feldgrößen und somit auch die Dehnungen im PC-gekoppelten Komposit innerhalb der Lagen konstant. Daher werden in den Abbildungen 6.31 und 6.32 die zeitliche Evolution der Dehnungskomponenten

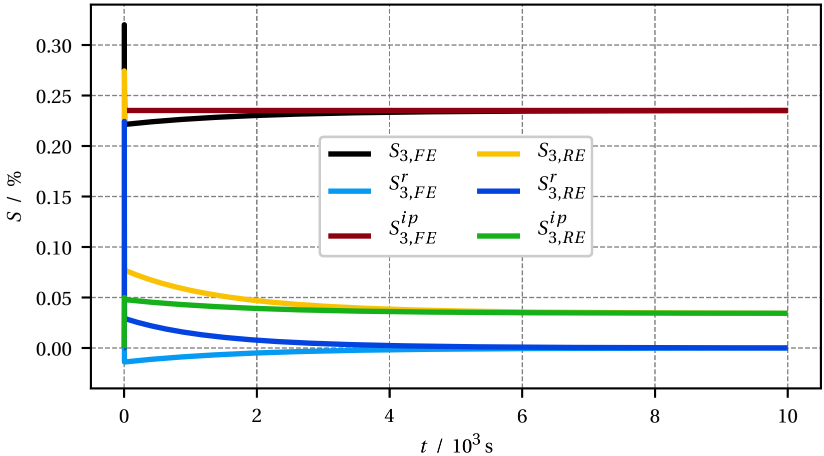


Abbildung 6.31: Zeitliche Verläufe der simulierten, über die Lagen konstanten totalen, reversiblen und irreversiblen Querdehnungen des Ferroelekrikums und des Relaxors für den PC-gekoppelten Zweilagenkomposit. $S_3^{im} \equiv 0$, daher nicht dargestellt.

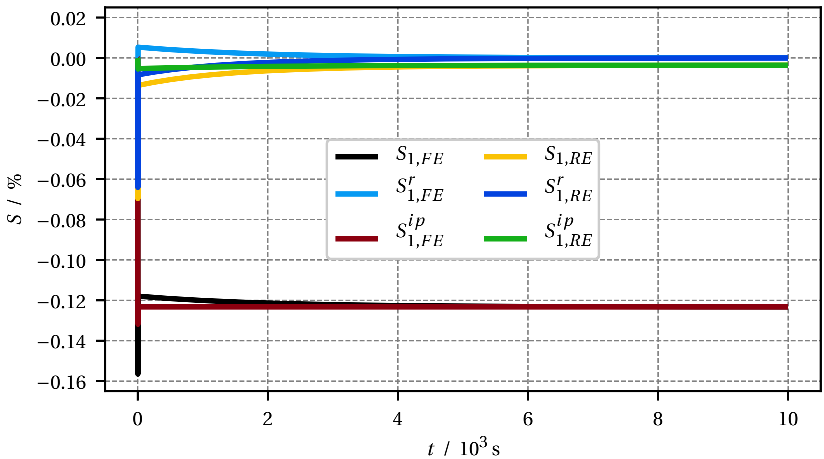


Abbildung 6.32: Zeitliche Verläufe der simulierten, über die Lagen konstanten totalen, reversiblen und irreversiblen Querdehnungen des Ferroelekrikums und des Relaxors für den PC-gekoppelten Zweilagenkomposit. $S_3^{im} \equiv 0$, daher nicht dargestellt.

der beiden Lagen dargestellt. Hierbei zeigen die jeweiligen Dehnungen parallel und quer zur Belastungsrichtung vergleichbare Veränderungen: Die reversiblen Dehnungen S_3^r und S_1^r der beiden Lagen reduzieren sich (betragsmäßig) zu Beginn der Haltezeit deutlich und verschwinden im weiteren Verlauf. Dies lässt sich durch den Abbau der im Inneren der Komponenten wirkenden elektrischen Felder erklären. Daraus resultiert, dass nach hinreichender Haltezeit die totalen Dehnungen mit den polarisationsinduzierten irreversiblen Dehnungen übereinstimmen. Insgesamt betrachtet beeinflusst die Leitfähigkeit das Dehnungsverhalten des PC-gekoppelten Komposit nur geringfügig.

Für den PSC-gekoppelten Komposit ist die Darstellung der Dehnungen über der Zeit, aufgrund der über die Höhe veränderlichen Feldgrößen, nicht repräsentativ. Daher wird nun die Verteilung der Querdehnung aus Abb. 6.27 zum Zeitpunkt t_2 in Abb. 6.33 um den Zeitpunkt t_3 ergänzt. Darin lassen sich nur für

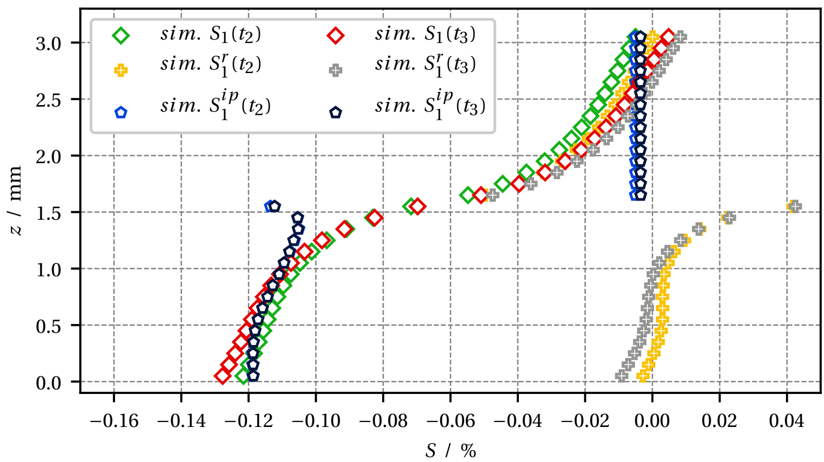


Abbildung 6.33: Vergleich der simulierten totalen, reversiblen und irreversiblen Querdehnungsverteilungen für den PSC-gekoppelten Zweilagenkomposit zu den Zeitpunkten t_2 und t_3. $S_3^{im} \equiv 0$, daher nicht dargestellt.

die totale und die reversible Dehnung nennenswerte Abweichungen zwischen beiden Zeitpunkten feststellen, die an der Ober- bzw. Unterseite am größten

sind und zur Grenzfläche hin verschwinden. Die totale und die reversible Dehnung nehmen durch die Haltezeit im Relaxor (obere Lage) zu und im Ferroelektrikum (untere Lage) ab. Die polarisationsinduzierte irreversible Dehnung bleibt in beiden Lagen nahezu unverändert. Die elektrische Leitfähigkeit hat folglich, wie bereits bei der PC Kopplung, keinen dominierenden Einfluss auf die Dehnungsverteilung des PSC-gekoppelten Komposits.

Nun wird der Einfluss der elektrischen Leitfähigkeit auf die Verteilung der Feldgrößen φ, E_3, P_3 und T_1 über die Höhe der Komposite betrachtet. Ergänzend zu Abb. 6.28 sind diese Größen zum Zeitpunkt t_3 in Abb. 6.34 dargestellt. Die zum Zeitpunkt t_2 im Inneren der Komposite vorhandenen Potentiale reduzieren sich im Laufe der Zeit und verschwinden schließlich, wie zum Zeitpunk t_3 ersichtlich ist. Folglich sind die elektrischen Felder bis auf numerische Ungenauigkeiten ebenfalls Null. Die elektrische Leitfähigkeit führt im Laufe der Zeit zur Aufhebung der Polarisationskopplung. Dies ist durch den nun unstetigen Verlauf der Polarisation über die Höhe zu erkennen. Der PC-gekoppelte Komposit weist stückweise konstante Verläufe der Polarisation auf. Dabei hat sich die Polarisation im Vergleich zum Zeitpunkt t_2 im Relaxor, obere Lage, etwa um die Hälfte reduziert und im Ferroelektrikum, untere Lage, ist hingegen eine minimal höhere Polarisation zu erkennen. Dies lässt sich dadurch erklären, dass sich das elektrische Feld in der unteren Lage nach einem positivem Wert bei t_1 und einem negativem Wert bei t_2 wieder zu Null „erholt“. Beim PSC-gekoppelten Komposit ist der Einfluss der elektrischen Leitfähigkeit auf die Polarisation stärker. Der Verlauf der Polarisation ist nun zusätzlich nichtlinear. In der oberen Lage nimmt die Polarisation von der Grenzfläche zum oberen Rand ab und weist einen Knick in dessen Mitte auf. In der unteren Lage ist ein starker Einfluss nahe der Grenzfläche durch eine starke Krümmung der Polarisationsverteilung zu beobachten. Die Differenz der Polarisation an der Grenzfläche entspricht der Ladungsdichte, die durch die elektrische Leitfähigkeit verursacht wird. Der Betrag der Ladungsdichte wird durch die zusätzliche Dehnungskopplung deutlich verringert. Die Leitfähigkeit hat auf die mechanische Spannung nahezu keinen Einfluss und die Kurven der ausgewerteten Zeitpunkte liegen nahezu exakt übereinander.

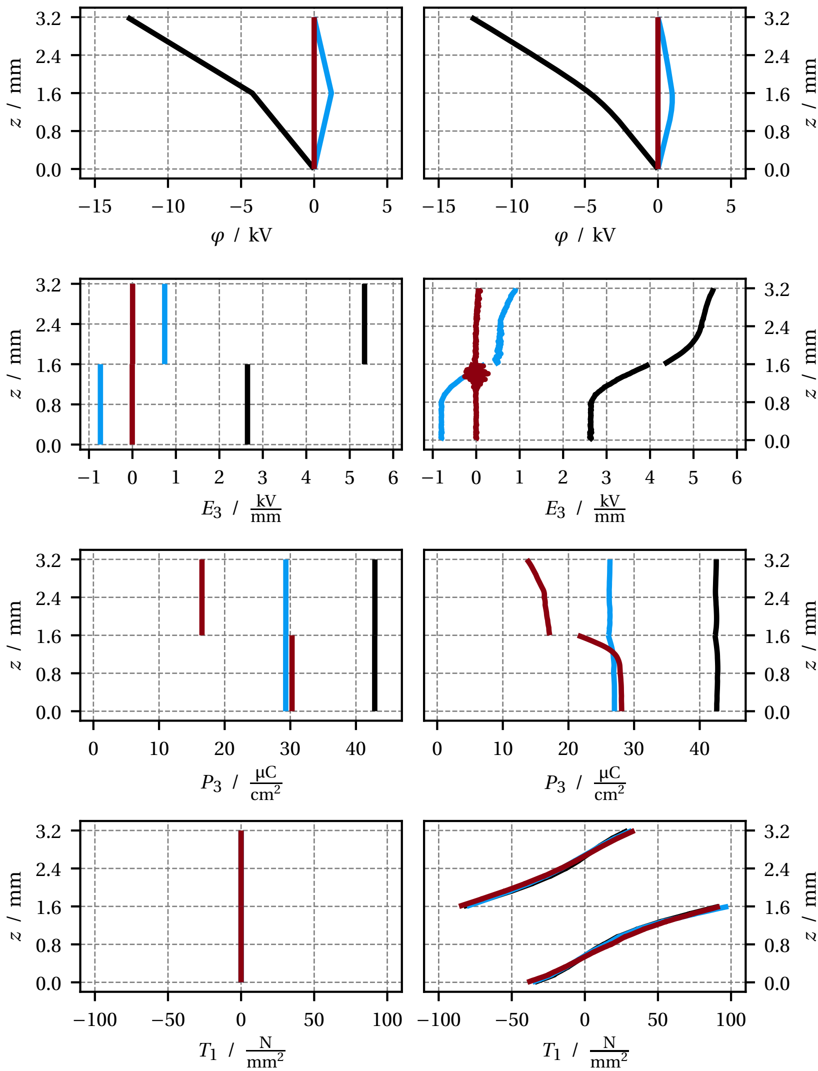


Abbildung 6.34: Darstellung $z-\varphi$, $z-E_3$, $z-P_3$ und $z-T_1$ für die PC- (links) und PSC- gekoppelten Komposite zu den Zeitpunkten t_1 (schwarz), t_2 (blau) und t_3 (rot).

Unter Berücksichtigung der elektrischen Leitfähigkeit zeigen die simulierten Komposite ein realitätsnahes Verhalten. Die im Inneren vorhandenen Potentiale und elektrischen Felder bauen sich trotz der sehr geringen Leitfähigkeiten im Laufe der Zeit ab. Mangels experimenteller Messdaten mit entsprechend langer Beobachtungsdauer ist kein Vergleich zwischen Experiment und Simulation möglich. Die elektrische Leitfähigkeit beeinflusst die PC- und PSC-gekoppelten Komposite, wie anhand der durchgeführten Untersuchungen aufgezeigt, nur geringfügig in den Beträgen der Feldgrößen, jedoch nicht im grundsätzlichen Verhalten. Daher wird auf die Berücksichtigung der elektrische Leitfähigkeit im weiteren Verlauf der vorliegenden Arbeit verzichtet.

6.6 Räumliche Verteilung der Feldgrößen im Komposit

Ergänzend zu den Darstellungen der Feldgrößen φ, E_3, S_1, S_3, P_3 und T_1 an Punkten bzw. Kanten werden nun Volumenplots des Viertelmodells eines Komposits mit 50 % V_{FE} Volumenanteil präsentiert. Da alle betrachteten Feldgrößen der PC-gekoppelten Komposite in x- und y-Richtung, also rechtwinklig zur Belastungsrichtung, konstant sind, werden für diese Kopplungsart keine Volumenplots vorgestellt. Die bereits gezeigten Diagramme, wie z.B. Abb. 6.34, sind hierfür besser geeignet, da dort direkt Zahlenwerte abgelesen werden können. Durch die zusätzliche Dehnungskopplung sind die Feldgrößen im PSC-gekoppelten Komposit rechtwinklig zur Belastungsrichtung im Allgemeinen veränderlich. Eine alleinige punktweise Darstellung repräsentiert daher nicht mehr das ganze System. Die Verteilungen der genannten Feldgrößen im Inneren des Komposits werden zu den Zeitpunkten der maximalen Belastung t_1 und der vollständigen Entlastung t_2 in den Abbildungen 6.35 - 6.40 als Volumenplots dargestellt. Sichtbar sind hierbei die Symmetrieflächen und damit die Verteilung der Feldgrößen im Inneren des Komposits. Ebenso ist die obere

Fläche sichtbar, auf der die elektrische Belastung aufgebracht wird. Zur besseren Vergleichbarkeit der beide Zeitpunkte werden jeweils gleiche Farbskalen verwendet. Die Minima und Maxima der Feldgrößen sind ebenfalls enthalten.

Nun werden die einzelnen Abbildungen genauer betrachtet. Das Potential ist in Abb. 6.35 dargestellt. Darin ist für beide Zeitpunkte ausschließlich eine Veränderung über die Höhe des Komposits zu beobachten. Zum Zeitpunkt t_1 ist eine kontinuierliche Änderung des Potentials über die Höhe zu erkennen. Zum Zeitpunkt t_2 ist im Inneren des Komposit ein positives Potential vorhanden. Die Verteilung des elektrischen Feldes parallel zur Belastungsrichtung ist in Abb. 6.36 dargestellt. Dies ist nun in alle drei Raumrichtungen veränderlich. Zu beiden Zeitpunkten sind in den Schichten, abgesehen vom Bereich um die Grenzfläche herum, in etwa konstante Verteilungen der elektrischen Felder zu erkennen. Durch die Dehnungskopplung erhöhen bzw. verringern sich die Felder in der unteren und oberen Schicht zur Grenzfläche und der zentralen Achse hin. Zum Zeitpunkt t_2 ist dieser Effekt etwas geringer. Trotz der äußeren Entlastung sind hohe interne elektrische Felder vorhanden. In den Abbildungen 6.37 und 6.38 sind die Dehnungskomponenten S_1 und S_3 dargestellt. Darin ist deutlich zu erkennen, dass die S_1-Dehnungen an der Grenzfläche übereinstimmen. Mit größer werdendem Abstand zur Grenzfläche verringert sich der Einfluss der Dehnungskopplung auf die S_1- und S_3-Dehnungen analog zu den vorausgehenden Beobachtungen. Betragsmäßig sind die Dehnungen in der unteren Lage immer höher als in der oberen Lage. In Abb. 6.39 ist die Polarisation in Richtung der Belastung dargestellt. Zum Zeitpunkt t_1 ist ein nahezu homogener Zustand zu beobachten. Lediglich am Rand zu den freien Oberflächen variieren die Werte etwas. Zum Zeitpunkt t_2 sind geringere Werte zu beobachten. Die genannten Einflüsse am Rand sind hier deutlicher zu erkennen. Die Verteilung der mechanischen Spannung quer zur Belastungsrichtung, Abb. 6.40, zeigt ober- und unterhalb der Grenzfläche, bedingt durch die Dehnungskopplung, die betragsmäßig höchsten Spannungen. Oberhalb der Grenzfläche sind dies Druckspannungen und unterhalb Zugspannungen, die in etwa gleiche Beträge aufweisen. Die Extremwerte werden an der zentralen Achse erreicht und nehmen zu den freien Oberflächen hin ab. Es verbleiben Singularitäten an den äußeren Kanten der Grenzfläche. Die beiden

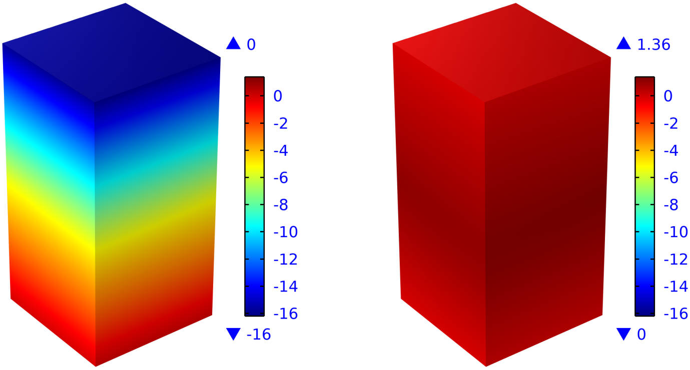


Abbildung 6.35: Volumenplot φ / kV für den PSC-gekoppelten Komposit zu den Zeitpunkten t_1 (links) und t_2 (rechts).

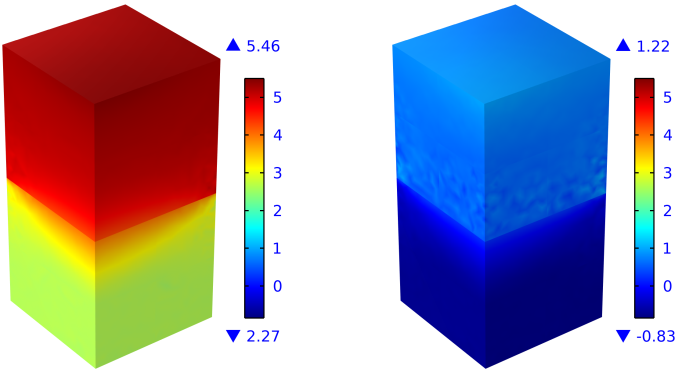


Abbildung 6.36: Volumenplot E_3 / kV/mm für den PSC-gekoppelten Komposit zu den Zeitpunkten t_1 (links) und t_2 (rechts).

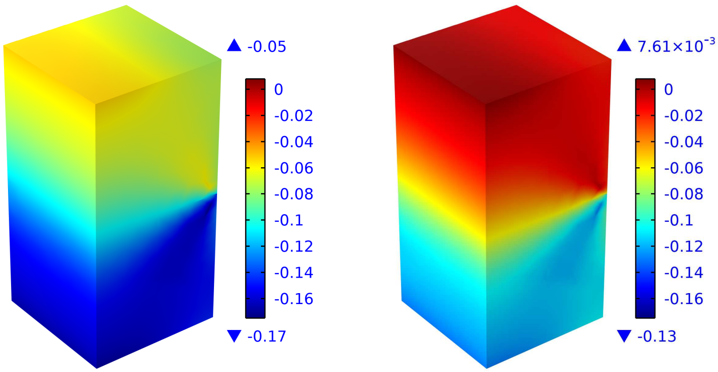


Abbildung 6.37: Volumenplot S_1 / % für den PSC-gekoppelten Komposit zu den Zeitpunkten t_1 (links) und t_2 (rechts).

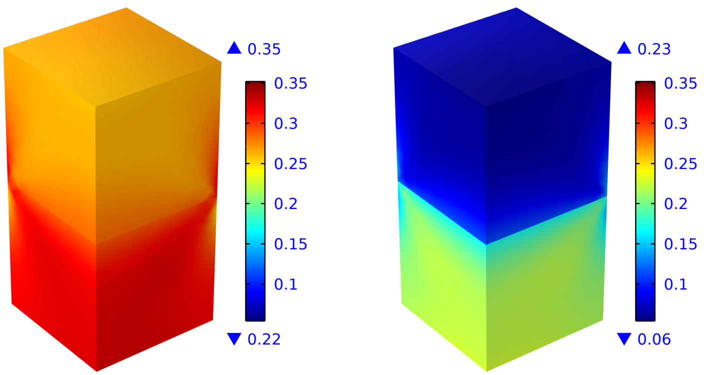


Abbildung 6.38: Volumenplot S_3 / % für den PSC-gekoppelten Komposit zu den Zeitpunkten t_1 (links) und t_2 (rechts).

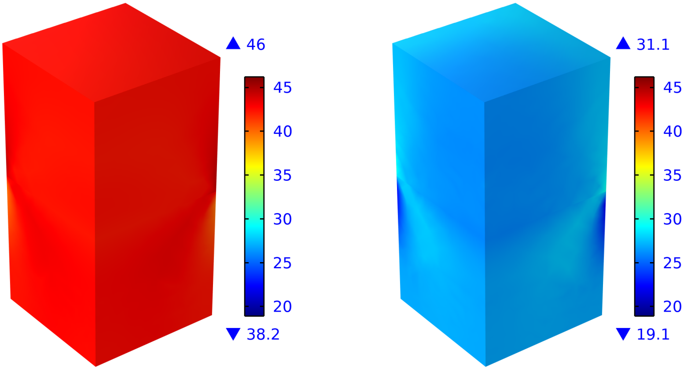


Abbildung 6.39: Volumenplot P_3 / µC/cm^2 für den PSC-gekoppelten Komposit zu den Zeitpunkten t_1 (links) und t_2 (rechts).

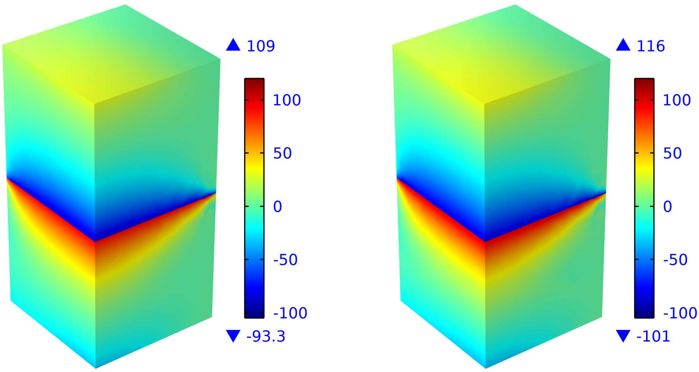


Abbildung 6.40: Volumenplot T_1 / N/mm^2 für den PSC-gekoppelten Komposit zu den Zeitpunkten t_1 (links) und t_2 (rechts).

Zeitpunkte unterscheiden sich nur geringfügig. Jedoch werden zum Zeitpunkt t_2 höhere Beträge beobachtet. Dies lässt sich durch die Charakteristik des Relaxors erklären: Der Relaxor reduziert bei Entlastung die S_1-Dehnung. An der Grenzfläche führt dies zu einer stärkeren Zwängung und damit zu den etwas höheren Spannungen.

6.7 Fazit Simulation der Zweilagenkomposite

Am Ende dieses umfangreichen Kapitels über die Simulation der „realen“ Zweilagenkomposite werden die Ergebnisse noch einmal zusammengefasst. Anschließend wird ein Fazit gezogen. Mit dem Viertel- und dem Säulenmodell werden zunächst zwei FEM-Modelle mit unterschiedlichen Abstraktionsgraden einschließlich der zugehörigen Rand- und Übergangsbedingungen aufgebaut und anschließend untereinander verglichen. Dabei wird festgestellt, dass die globalen Hysteresen der beiden FEM-Modelle nahezu identisch sind. Das Säulenmodell benötigt jedoch deutlich geringere Berechnungszeiten.

Ebenso wird der Einfluss der zusätzlichen Dehnungskopplung auf die jeweiligen FEM-Modelle untersucht. Für das Viertelmodell ist dabei nahezu kein Einfluss, für das Säulenmodell nur ein minimaler Einfluss auf das Verhalten der globalen $P-E$- und $S-E$-Hysteresen zu beobachten. Dennoch werden die Feldgrößen im Inneren der Komposite durch die zusätzliche Dehnungskopplung beeinflusst, besonders im Bereich der Grenzfläche.

Aus der Gegenüberstellung der experimentell ermittelten und der simulierten Hysteresen lassen sich die folgenden Erkenntnisse gewinnen: Bei reiner Polarisationskopplung sind sowohl für die $P-E$- als auch für die $S-E$-Hysteresen deutliche Abweichungen zu beobachten, deren Ursache im experimentellen Versuchsaufbau, genauer gesagt im unvollständigen flächigen Kontakt zwischen den beiden Lagen, vermutet wird. Mit der zusätzlichen Dehnungskopplung, im Experiment durch den elektrisch leitfähigen Kleber realisiert,

sind die Abweichungen der $P-E$-Hysteresen etwas geringer, die $S-E$-Hysteresen stimmen gut überein. Für die simulierten Komposite kann der experimentell beobachtete Überhöhungseffekt des piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten, unabhängig von den FEM-Modellen und den Kopplungsarten, nicht bestätigt werden. Der Vergleich zwischen der gemessenen und der simulierten Querdehnungsverteilung zeigt deutliche Abweichungen und offenbart, dass der verwendete Kleber keine vollständige Dehnungskopplung bewirken kann.

Durch die Simulationen sind Einblicke in die inneren Feldgrößen von komplexen, elektromechanisch gekoppelten Strukturen möglich, die sich in Experimenten der derzeitigen Messtechnik entziehen. Nach der Entlastung verbleiben im Komposit hohe elektrische Felder, die unter Berücksichtigung der Leitfähigkeit im Laufe der Zeit relaxieren. Insgesamt kann zur Simulation der Zweilagenkomposite ein positives Fazit gezogen werden. Das entwickelte makroskopische Materialmodell liefert unter den getroffenen Annahmen und Idealisierungen qualitativ und quantitativ plausible Ergebnisse. Fraglich erscheint allerdings, ob der experimentell beobachtete Überhöhungseffekt des piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten überhaupt durch Simulationen reproduziert und gegebenenfalls optimiert werden kann. Zur Klärung dieser Fragen wird im Folgenden Kapitel eine Parameterstudie mit dem Säulenmodell durchgeführt.

7 Parameterstudie zur Optimierung des Zweilagenkomposits

In diesem Kapitel wird eine Parameterstudie zur Optimierung der effektiven elektromechanischen Eigenschaften und somit des piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten d_{33}^* der unterschiedlich gekoppelten Zweilagenkomposite vorgestellt. Dieser Koeffizient ist in mechatronischen Anwendungen der Sensorik und Aktuatorik zur Bauteilauslegung von piezoelektrischen Komponenten besonders wichtig. Die rechnerische und graphische Bestimmung dieses Koeffizienten ist in Gl. (3.1) bzw. in Abb. 3.8 dargestellt.

Kann der experimentell beobachtete Überhöhungseffekt des Koeffizienten durch die Simulationen bestätigt werden? Durch welche Parameter kann dieser Effekt verstärkt und optimiert werden? Was ist die Ursache dieses Effekts? Diese Fragen sollen durch die Parameterstudie beantwortet werden und eine gezielte Weiterentwicklung des verwendeten Werkstoffsystems ermöglichen. Um einen möglichst großen Parameterraum untersuchen zu können, wird das in Kap. 6 definierte Säulenmodell einschließlich der dort definierten Randbedingungen und Vernetzung verwendet. Wie bereits diskutiert, benötigt dieses Modell im Vergleich zum Viertelmodell deutlich geringere Simulationszeiten und -ressourcen. Letzteres macht die Durchführung dieser umfangreichen Parameterstudie erst möglich.

7.1 Variationen der Parameterstudie

Als Ausgangspunkt der Studie dienen die beiden Materialien NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN, die zur sprachlichen Vereinfachung als Ferroelektrikum (FE) und Relaxor (RE) bezeichnet werden. Die sehr gute Übereinstimmung zwischen den experimentell ermittelten und den simulierten Hysteresen der beiden Materialien wurde bereits in Kap. 5 diskutiert. Es werden nun einzelne Materialparameter des Relaxors, die volumetrische Zusammensetzung des Zweilagenkomposits, die elektromechanische Kopplungsart an der Grenzfläche sowie die Höhe der elektrischen Belastung variiert. Die zeitlich veränderliche elektrische Belastung erfolgt dabei analog zu Abb. 6.18 über zwei unipolare Zyklen. Dadurch können die s.g. Subhysteresen (engl. *minor hystereses*) erfasst werden. Das Ferroelektrikum bleibt in der gesamten Studie unverändert. Der Einfluss der jeweiligen Variationen wird anschließend ausgewertet und diskutiert.

Variiert werden:

- Der Faktor $E^c_{L,RE}/E^c_{RE}$ beeinflusst das eingeschnürte Verhalten der Polarisationshysterese des Relaxors. Bei einem Wert von eins ist keine Einschnürung vorhanden. Bei einem Wert von null ergibt sich ein rein paraelektrisches Verhalten ohne Hysterese. Die Normierung dieses Faktors erfolgt mit dem jeweils verwendeten Wert der Koerzitivfeldstärke des Relaxors E^c_{RE} (siehe nächsten Punkt). Für diese Untersuchung werden die Werte $E^c_{L,RE}/E^c_{RE} \in \{0.75,\ 0.85,\ 0.95\}$ betrachtet.
- Der Faktor E^c_{RE}/E^c_{FE} beeinflusst die Koerzitivfeldstärke des Relaxors und wird im Bereich $E^c_{RE}/E^c_{FE} \in \{0.65,\ 0.75,\ 0.85\}$ betrachtet.
- Der Faktor $P^{sat}_{RE}/P^{sat}_{FE}$ beeinflusst das Polarisationsvermögen des Relaxors und wird im Bereich $P^{sat}_{RE}/P^{sat}_{FE} \in \{0.70,\ 0.80,\ 0.90\}$ betrachtet.

- Der Faktor V_{FE}/V_{FE+RE} beeinflusst den Volumenanteil des Ferroelektrikums. Es werden die Werte $V_{FE}/V_{FE+RE} \in \{0.10,\ 0.20,\ \ldots,\ 0.90\}$ betrachtet. Zusätzlich werden die beiden Grenzfälle des (modifizierten) Relaxors $V_{FE}/V_{FE+RE} = 0.00$ sowie des (unmodifizierten) Ferroelektrikums $V_{FE}/V_{FE+RE} = 1.00$ berücksichtigt. Zur Verbesserung der Lesbarkeit werden die Volumenanteile nachfolgend als prozentualer Wert des Ferroelektrikums angegeben.

- Die Kopplung zwischen den beiden Komponenten wird als reine Polarisationskopplung (PC) und als Polarisations- und Dehnungskopplung (PSC) variiert.

- Die Amplitude des aufgebrachten elektrischen Feldes E_{max} wird ebenfalls variiert. Zur Vergleichbarkeit mit den durchgeführten Experimenten werden hier die Werte $E_{max} \in \{3.5,\ 4.0\}$ kV/mm betrachtet. Zur dimensionslosen Darstellung werden diese Werte mit der „Sättigungsfeldstärke“ $E_{FE}^{sat} = E^c + c^e \cdot P^{sat} = 3.36\,\mathrm{kV/mm}$ des Ferroelektrikums normiert. Bei dieser Feldstärke tritt die Sättigung des Ferroelektrikums auf dem sekundären Lastpfad ein. Diese Normierung wird gewählt, da die variierte Belastung einmal geringfügig und einmal deutlich oberhalb der Sättigungsfeldstärke liegt. Daraus ergeben sich die dimensionslosen Werte $E_{max}/E_{FE}^{sat} \in \{1.04,\ 1.19\}$.

Zur Veranschaulichung der variierten Parameter sind diese in den experimentellen und simulierten $P-E$-Hysteresen der beiden unmodifizierten Ausgangsmaterialien in Abb. 7.1 dargestellt. In Tab. 7.1 sind die Parameter-, Kopplungs- und Belastungsvariationen noch einmal in kompakter Weise aufgelistet. Mit den aufgeführten Variationen ergeben sich 1188 Kombinationen. Für 0 % V_{FE} und 100 % V_{FE} entfallen jedoch die Kombinationen mit den unterschiedlichen Kopplungsarten, da diese in den einzelnen Materialien keinen Einfluss besitzen. Ebenso entfallen für 100 % V_{FE} die Kombinationen mit der Variation der Materialparameter des Relaxors. Somit verbleiben 1027 unabhängige Kombinationen, die mit dem Finite-Elemente-Programm COMSOL zu berechnen sind.

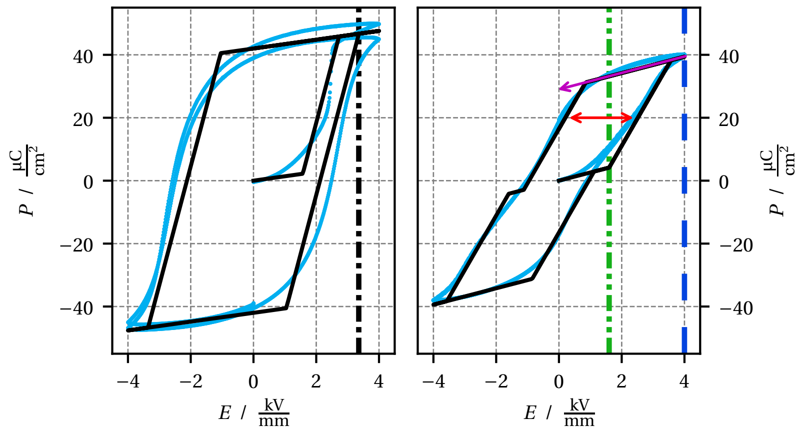


Abbildung 7.1: Experimentelle (hellblau) und simulierte (schwarz) $P-E$ Hysteresen von NBT-6BT (links) und NBT-6BT-4KNN (rechts). Zusätzliche Darstellung von E^{sat} (schwarz gestrichelt) und der variierten Parameter E_L^c (Doppelpfeil), E^c (grün gestrichelt), P^{sat} (lila Pfeil) und E_{max} (blau gestrichelt).

7.2 Auswertung und Darstellung der Ergebnisse

Bedingt durch die Wahl des Säulenmodells verändern sich die internen Felder laut Theorie lediglich über die Höhe des Komposits, bzw. sind über die Höhe der Komponenten konstant. Die Auswertung der Dehnungen erfolgt, analog zu den experimentellen DIC Messungen, für die Dehnungsfelder der Komponenten durch die Mittelwertbildung über deren Teilflächen bzw. für die globalen Dehnungsfelder über die gesamte Seitenfäche der Komposite. Alternativ können die globalen Dehnungsfelder auch aus den Verschiebungen eines einzelnen Knotens an der Oberseite, analog zu den experimentellen LVDT Messungen, ermittelt werden. Beide Methoden führen zum selben Ergebniss, jedoch werden durch die Mittelung über die Flächen eventuell auftretende numerische Ungenauigkeiten herausgemittelt. Aus diesem Grund wird auch die

Tabelle 7.1: Übersicht Variationen

Parameter	Variation	realer Komposit
$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	{0.75, 0.85, 0.95}	0.73
$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	{0.65, 0.75, 0.85}	0.85
$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	{0.70, 0.80, 0.90}	0.69
$\frac{V_{FE}}{V_{FE+RE}}$	{0.00, 0.10, ..., 1.00}	0.50
Kopplung	PC / PSC	PC / PSC
$\frac{E_{max}}{E^{sat}_{FE}}$	{1.04, 1.19}	1.19

Polarisation über die obere Fläche der Komposite gemittelt. Aufgrund der hohen Anzahl an Simulationen kann nachfolgend nur eine Auswahl der Ergebnisse detailliert diskutiert werden. Alle grundlegend auftretende Effekte werden dabei jedoch behandelt. Alle Ergebnisse dieser Studie sind in Anhang E dokumentiert. Dabei ist jeweils der Einfluss einer Variation auf den d^*_{33}-Großsignalkoeffizienten über dem Volumengehalt V_{FE} des Ferroelektrikums in verschiedenen Kombinationen dargestellt. Dadurch ergeben sich insgesamt 108 verschiedene $d^*_{33} - V_{FE}$-Kurven. In den nachfolgenden Unterkapiteln werden die jeweiligen Einflüsse der variierten Parameter für s.g. *Cases* anhand einzelner Beispiele diskutiert. Die Cases ermöglichen eine Zuordnung zu den konstant gehaltenen Parametern. Für die Darstellung der Variationen ergeben sich jeweils neue Nummerierungen der Cases.

Tabelle 7.2: Exemplarisch vorgestellte Cases $E^c_{L,RE}/E^c_{RE}$

E^c_L case	$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	Kopplung	$\frac{E_{max}}{E^{sat}_{FE}}$
1	0.65	0.7	PC	1.04
5	0.65	0.9	PC	1.04
36	0.85	0.9	PSC	1.19

7.2.1 Einfluss der Einschnürung

Der Faktor $E^c_{L,RE}/E^c_{RE}$ beeinflusst das eingeschnürte Verhalten der Polarisationshysterese des Relaxors. Die Auswirkungen der Variation auf die Zweilagenkomposite mit den Werten $E^c_{L,RE}/E^c_{RE} \in \{0.75,\ 0.85,\ 0.95\}$ werden bei ansonsten konstant gehaltenen Parametern untersucht. Somit ergeben sich 36 Cases. Diese sind im Anhang in den Abbildungen E.1 - E.3 dargestellt. Die zugehörigen Parameter sind in Tab. E.1 aufgelistet. Drei dieser Cases werden exemplarisch in Abb. 7.2 vorgestellt. Die zugehörigen Parameter sind in Tab. 7.2 aufgeführt. Die beobachteten Eigenschaften gelten gleichermaßen für die verbleibenden Cases.

Es sind die folgende Grundtypen der $d^*_{33} - V_{FE}$-Kurven vorhanden, bei denen die variierten Parameter nur geringen Einfluss haben: Case 1 weist ein linears Verhalten der Kurven gemäß der Mischungsregel auf. In Case 5 ist zunächst ein linearer Anstieg, gefolgt von einem schlagartigen Abfall und anschließender linearen Abnahme der Kurven zu erkennen. Dieser Überhöhungseffekt wird hier erstmals in der vorliegenden Arbeit anhand von Simulationen beobachtet. Case 36 zeigt ein nicht-monotones, wellenartiges Verhalten, bei dem die Kurven zunächst abnehmen, wieder ansteigen und abermals, nahezu linear abnehmen, ohne dabei eine (nennenswerten) Überhöhungen aufzuweisen. Es ist ersichtlich, dass der Faktor $E^c_{L,RE}/E^c_{RE}$ für die untersuchte Variation einen

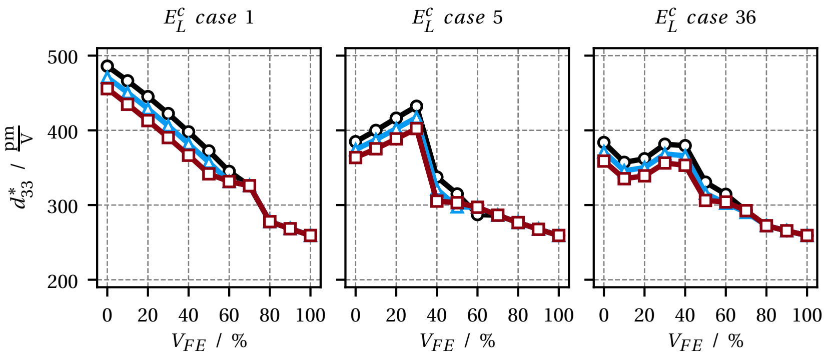


Abbildung 7.2: Darstellung von d_{33}^* über V_{FE} für die Cases 1, 5 und 36 der Variation von $E_{L,RE}^c / E_{RE}^c$ mit den Werten: 0.75 (schwarz), 0.85 (blau) und 0.95 (rot).

geringen Einfluss auf die d_{33}^*-Werte besitzt, der jedoch mit steigendem Volumengehalt von V_{FE} abnimmt bzw. vollständig verschwindet. Bei kleinem Volumengehalt erreichen in allen Cases die Kurven mit der größten Einschnürung des Relaxors, also mit dem geringstem Faktor $E_{L,RE}^c / E_{RE}^c = 0.75$, die höchsten d_{33}^*-Werte. Parallel dazu verlaufen die Kurven für die Faktoren 0.85 und 0.95 mit etwas kleineren Werten. Diese Reihenfolge bleibt bei allen Cases gleich. Mit steigendem Volumengehalt des Ferroelektrikums werden die Abstände der Kurven geringer bzw. verschwinden komplett. Bei weiterer Steigerung des Volumengehalts liegen die Kurven exakt übereinander. Eine stärkere Einschnürung des Relaxors verbessert die d_{33}^*-Werte des Zweilagenkomposits in geringem Maße, beeinflusst aber die Form der Kurven nicht. Dies kann auf den vorzeitigen Abfall der Polarisation bei der Entlastung und folglich mit dem Rückgang der Dehnungskomponente (parallel zur Belastungsrichtung) im Relaxor zurückgeführt werden.

Tabelle 7.3: Exemplarisch vorgestellte Cases E^c_{RE}/E^c_{FE}

E^c case	$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	Kopplung	$\frac{E_{max}}{E^{sat}_{FE}}$
11	0.85	0.9	*PC*	1.04
14	0.95	0.7	*PC*	1.19
23	0.75	0.9	*PSC*	1.04

7.2.2 Einfluss der Koerzitivfeldstärke

Der Faktor E^c_{RE}/E^c_{FE} beeinflusst die Koerzitivfeldstärke des Relaxors. Die Auswirkungen der Variation mit den Werten $E^c_{RE}/E^c_{FE} \in \{0.65, 0.75, 0.85\}$ werden nun untersucht. Es ergeben sich erneut 36 Cases, die im Anhang in den Abbildungen E.4 - E.6 dargestellt sind. Die zugehörigen Parameter sind in Tab. E.2 aufgelistet. Erneut werden exemplarisch drei dieser Cases in Abb. 7.3 vorgestellt. Die zugehörigen Parameter sind in Tab. 7.3 aufgeführt. Die beobachteten Eigenschaften gelten gleichermaßen für die verbleibenden Cases dieser Variation.

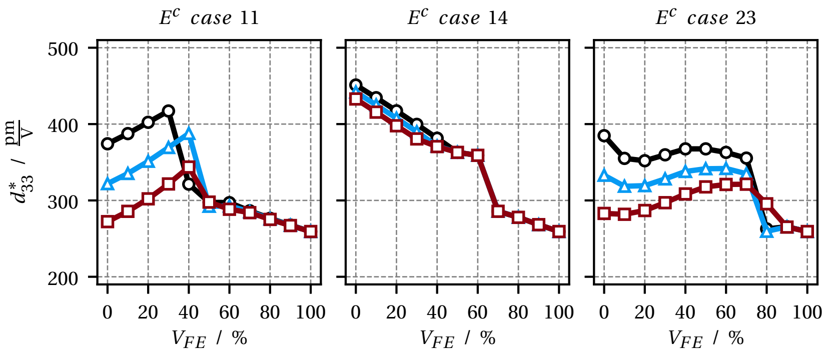


Abbildung 7.3: Darstellung von d^*_{33} über V_{FE} für die Cases 11, 14 und 23 der Variation von E^c_{RE}/E^c_{FE} mit den Werten: 0.65 (schwarz), 0.75 (blau) und 0.85 (rot).

Die drei bereits genannten Grundtypen der $d_{33}^{*} - V_{FE}$-Kurven sind erneut vorhanden, wobei die hier variierten Parameter zu deutlichen Abweichungen zwischen den Kurven führen können: Case 11 zeigt einen deutlichen Überhöhungseffekt. Case 14 zeigt einen nahezu linearen Verlauf gemäß der Mischungsregel. Case 23 zeigt ein nicht-monotones, wellenartiges Verhalten mit, je nach Parametervariation, unterschiedlich ausgeprägter Überhöhung. Die Variation des Faktors E_{RE}^{c}/E_{FE}^{c} zeigt in einigen Cases einen erheblichen Einfluss auf die erzielten d_{33}^{*}-Werte. Bis auf wenige Ausnahmen werden mit dem geringsten Faktor $E_{RE}^{c}/E_{FE}^{c} = 0.65$ die höchsten d_{33}^{*}-Werte erreicht, gefolgt von den Faktoren 0.75 und 0.85. Mit steigendem Faktor E_{RE}^{c}/E_{FE}^{c} sinken somit die d_{33}^{*}-Werte. Die Form der Kurven kann der Faktor jedoch nicht beeinflussen. Mit steigenden Volumengehalten von V_{FE} nimmt der Abstand der Kurven erwartungsgemäß ab bzw. verschwindet vollständig.

7.2.3 Einfluss der Sättigungspolarisation

Mit dem Faktor $P_{RE}^{sat}/P_{FE}^{sat}$ wird das Polarisationsvermögen des Relaxors beeinflusst. Aufgrund der entsprechenden Konstitutionen beeinflusst dies indirekt auch die Tensoren $\mathbb{d}$ und $\boldsymbol{S}^{ip}$. Die Auswirkungen der Variation des Faktors mit den Werten $P_{RE}^{sat}/P_{FE}^{sat} \in \{0.70,\ 0.80,\ 0.90\}$ werden untersucht. Die daraus resultierenden 36 Cases sind im Anhang in den Abbildungen E.7 - E.9 dargestellt. Die zugehörigen Parameter sind in Tab. E.3 aufgelistet. Die hier diskutierten Cases sind in Abb. 7.4 dargestellt und die zugehörigen Parameter in Tab. 7.4 aufgelistet.

Im Gegensatz zu den bereits betrachteten Parametern besitzt der Faktor $P_{RE}^{sat}/P_{FE}^{sat}$ einen Einfluss auf die Form der $d_{33}^{*} - V_{FE}$-Kurven und damit, soweit vorhanden, ebenfalls auf den Überhöhungseffekt. Es existiert keine eindeutige Reihenfolge der Variationswerte auf die Anordnung der Kurven. Für Case 3 liegt die Kurve mit dem Faktor $P_{RE}^{sat}/P_{FE}^{sat} = 0.70$ zunächst über den anderen beiden Faktoren, mit zunehmendem Volumengehalt ändert sich dies jedoch. Bei 40 % V_{FE} weist die zugehörige Kurve sogar den geringsten Wert auf. Für den

Tabelle 7.4: Exemplarisch vorgestellte Cases $P^{sat}_{RE}/P^{sat}_{FE}$

P^{sat} case	$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	Kopplung	$\frac{E_{max}}{E^{sat}_{FE}}$
3	0.75	0.75	*PC*	1.04
16	0.85	0.75	*PC*	1.19
35	0.95	0.85	*PSC*	1.04

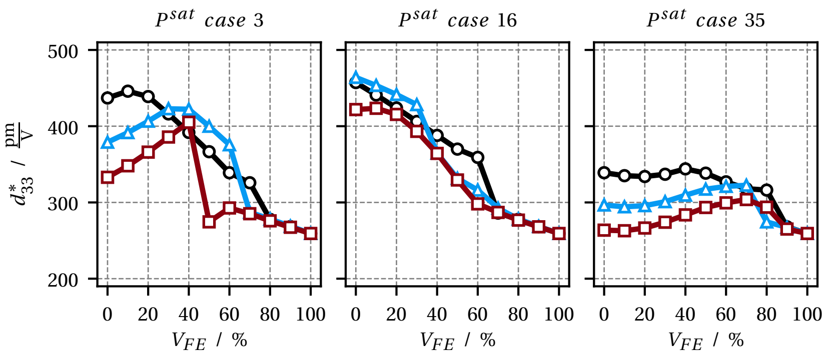


Abbildung 7.4: Darstellung von d^*_{33} über V_{FE} für die Cases 3, 16 und 35 der Variation von $P^{sat}_{RE}/P^{sat}_{FE}$ mit den Werten: 0.70 (schwarz), 0.80 (blau) und 0.90 (rot).

Faktor $P^{sat}_{RE}/P^{sat}_{FE} = 0.90$ ist mit steigendem Volumengehalt V_{FE} zunächst eine starke Zunahme des d^*_{33}-Wertes zu erkennen, der jedoch zwischen 40 % und 50 % V_{FE} sprunghaft abfällt und somit eine deutliche Überhöhung aufweist. Die ebenfalls dargestellten Cases 16 und 35 weisen wiederum andere Charakteristika auf, wobei keine oder nur moderate Überhöhungen ohne sprunghaften Abfall der Kurven zu beobachtet sind. Gemeinsam haben alle Cases lediglich, dass mit zunehmendem Volumengehalt des Ferroelektrikums die Abweichungen zwischen den Kurven geringer werden bzw. verschwinden. Der sprunghafte Abfall des d^*_{33}-Wertes lässt sich mit dem Verlust der $P-E$- bzw. $S-E$-Subhysteresen erklären. Auf diesen Aspekt wird am Ende dieses Kapitels genauer eingegangen.

7.2.4 Einfluss der Kopplungsart

Der Einfluss der Kopplungsart und damit der zusätzlichen Dehnungskopplung auf die $d_{33}^{*} - V_{FE}$-Kurven des simulierten Zweilagenkomposits mit „realen“ Materialparametern wurde bereits in Kap. 6.4.2 diskutiert. Diese Diskussion wird nun im Rahmen der Parameterstudie für PC- und PSC-gekoppelte Komposite fortgesetzt. Die sich ergebenden 54 Cases sind im Anhang in den Abbildungen E.10 - E.13 dargestellt. Die zugehörigen Parameter sind in den Tabellen Tab. E.4 und E.5 aufgelistet. Die hier diskutierten Cases sind in Abb. 7.5 dargestellt und die zugehörigen Parameter in Tab. 7.5 aufgelistet.

Tabelle 7.5: Exemplarisch vorgestellte Cases Kopplung

coupling case	$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	$\frac{E_{max}}{E^{sat}_{FE}}$
2	0.75	0.65	0.7	1.19
23	0.75	0.75	0.9	1.04
45	0.85	0.85	0.8	1.04

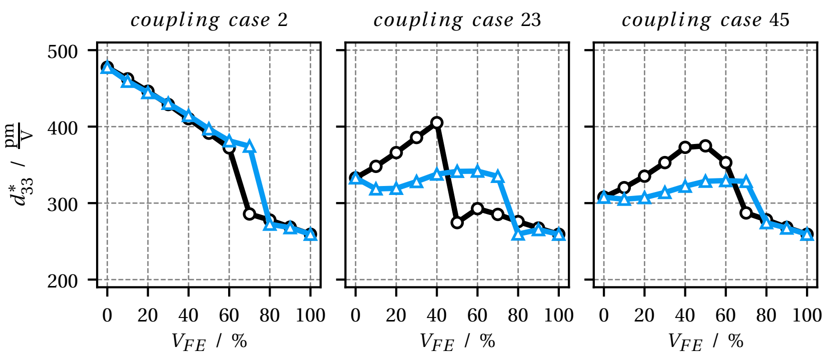


Abbildung 7.5: Darstellung von d_{33}^{*} über V_{FE} für die Cases 2, 23 und 45 der Variation der Kopplungsart: PC (schwarz) und PSC (blau).

Die zusätzliche Dehnungskopplung scheint auf einige Cases nahezu keinen oder nur einen geringen Einfluss zu haben, wie z.B. im dargestellten Case 2 zu erkennen ist. Dort liegen die Kurven der PC- und PSC-Kopplung, außer für einen einzigen Volumengehalt, nahezu exakt übereinander. Bei anderen Cases kann die zusätzliche Dehnungskopplung einen starken Einfluss auf die Form der $d_{33}^{*} - V_{FE}$-Kurven haben. Dies ist z.B. bei Betrachtung der Cases 23 und 45 zu erkennen, bei denen die PC-Kopplung deutlich stärkere Überhöhungen als die PSC-Kopplung aufweisen. Die zusätzliche Dehnungskopplung führt zu einer Reduktion des Überhöhungseffekts und zu einer Verschiebung des Maximums in Richtung 100 % V_{FE} und somit zum reinen Ferroelektrikum. Durch die zusätzliche Dehnungskopplung erfahren die Zweilagenkomposite einen stärkeren Zwang, da sich die Komponenten nicht unabhängig voneinander deformieren können. Aus mechanischer Sicht ist es daher plausibel, dass die Komposite mit PSC-Kopplung geringere d_{33}^{*}-Werte im Vergleich zur PC-Kopplung aufweisen. Das schlagartige Abfallen der Kurven ist auch bei den PSC-gekoppelten Kompositen zu beobachten, jedoch in tendenziell geringerem Ausmaß und bei höheren Volumenanteilen.

7.2.5 Einfluss der elektrischen Belastung

Als letzter Parameter der Studie wird die maximale elektrische Belastung variiert und deren Einfluss auf die Komposite untersucht. Die innere Verteilung der elektrischen Felder und damit auch die Evolution aller weiteren internen Feldgrößen wird durch die vorgegebene Belastung beeinflusst. Daher wird nun die Auswirkung der Variation des elektrischen Feldes mit den Werten $E_{max}/E_{FE}^{sat} \in \{1.04,\ 1.19\}$ untersucht. Die 54 Cases sind im Anhang in den Abbildungen E.15 - E.19 aufgeführt. Die zugehörigen Parameter sind in den Tabellen Tab. E.6 und E.7 aufgelistet. Die hier diskutierten Cases sind in Abb. 7.6 dargestellt und die zugehörigen Parameter in Tab. 7.6 aufgelistet.

Die Variation der aufgebrachten elektrischen Belastung kann in ihren Auswirkungen mit der Variation der Kopplungsart verglichen werden. Besonders bei

Tabelle 7.6: Exemplarisch vorgestellte Cases E_{max}/E_{FE}^{sat}

E_{max} case	$\frac{E_{L,RE}^{c}}{E_{RE}^{c}}$	$\frac{E_{RE}^{c}}{E_{FE}^{c}}$	$\frac{P_{RE}^{sat}}{P_{FE}^{sat}}$	Kopplung
9	0.75	0.85	0.8	PC
14	0.75	0.75	0.9	PC
22	0.85	0.65	0.7	PSC

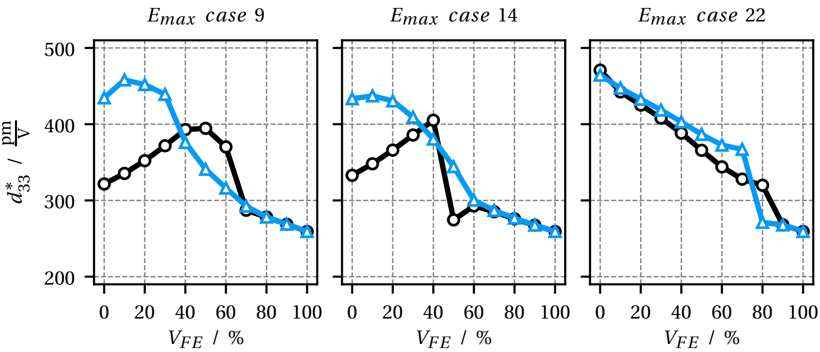


Abbildung 7.6: Darstellung von d_{33}^{*} über V_{FE} für die Cases 9, 14 und 22 der Variation der maximalen elektrischen Belastung E_{max}/E_{FE}^{sat} mit den Werten 1.04 (schwarz) und 1.19 (blau).

geringen bis mittleren Volumenanteilen des Ferroelektrikums ist bei einigen Cases ein sehr starker Einfluss vorhanden. Dies kann z.B. bei den hier dargestellten Cases 9 und 14 beobachtet werden. Für diese Cases verringern sich die Differenzen zwischen den verschiedenen Belastungsfaktoren tendenziell mit steigendem Volumengehalt. Für die Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.04$ sind dabei stärkere Überhöhungen der $d_{33}^{*} - V_{FE}$-Kurven, jedoch kleinere Absolutwerte von d_{33}^{*} im Vergleich zur Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.19$ zu beobachten. Weiterhin ist zu erkennen, dass eine Steigerung der elektrischen Belastung eine Verschiebung der Hochpunkte der $d_{33}^{*} - V_{FE}$-Kurven in Richtung 0 % V_{FE}, also in

Richtung des reinen Relaxors, verursacht. Für andere Parameterkombinationen, wie z.B. Case 22, besitzt die Erhöhung der aufgebrachten elektrischen Belastung nur einen geringfügigen Einfluss. Für diese Cases sind die Abweichungen deutlich geringer als bei den bereits diskutierten Cases. Allgemein lässt sich feststellen, dass der $d_{33}^* - V_{FE}$-Verlauf sehr stark durch die Höhe der elektrischen Belastung in seiner Form beeinflusst werden kann. Nennenswerte Überhöhungseffekte werden jedoch ausschließlich für die elektrische Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.04$ beobachtet.

7.3 Optimierung des Überhöhungseffekts

Nachdem der Einfluss der jeweiligen Parametervariation diskutiert wurde, stellen sich nun Fragen nach der bestmöglichen Parameterkombination im Hinblick auf die Optimierung des Überhöhungseffekts. Um die Auswirkungen der Parametervariationen der Studie auf den Überhöhungseffekt quantifizieren zu können, wird für alle $d_{33}^* - V_{FE}$-Kurven die jeweilige relative (prozentuale) Überhöhung ermittelt. Dies erfolgt durch den Quotienten $d_{33,max}^*/d_{33,RE}^*$ des maximalen d_{33}^*-Wertes mit dem Wert des reinen Relaxors, der ebenfalls von den Parametervariationen beeinflusst wird. Somit kann eine Reihenfolge der untersuchten Parameterkombinationen erstellt werden, die vollständig im Anhang in den Tabellen E.8 und E.9 aufgeführt ist. Darin ist ersichtlich, dass 44 der insgesamt 108 $d_{33}^* - V_{FE}$-Kurven ein Faktor von $d_{33,max}^*/d_{33,RE}^* > 1$ aufweisen und somit ein Überhöhungseffekt vorhanden ist. Für 20 Kurven sind Überhöhungen von mehr als 10 % und für 7 Kurven von mehr als 20 % zu beobachten. Die maximale Überhöhung beträgt 28.1 %.

Die sechs höchsten $d_{33,max}^*/d_{33,RE}^*$-Quotienten und deren zugehörige Parameter sind in Tab. 7.8 aufgelistet. Anhand dieser Tabelle ist ersichtlich, dass das Maximum des relativen Überhöhungseffekts für die hier untersuchten Parameterkombinationen ausschließlich für Komposite mit der reinen Polarisationskopplung und einer elektrischen Belastung von $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.04$ erreicht

Tabelle 7.7: Die sechs höchsten $d^*_{33,max}/d^*_{33,RE}$-Quotienten und deren Parameter

no.	$\frac{d^*_{33,max}}{d^*_{33,RE}}$	$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	coupling	$\frac{E_{max}}{E^{sat}_{FE}}$
1	1.281	0.75	0.85	0.9	PC	1.04
2	1.263	0.85	0.85	0.9	PC	1.04
3	1.236	0.95	0.85	0.9	PC	1.04
4	1.227	0.75	0.85	0.8	PC	1.04
5	1.218	0.85	0.85	0.8	PC	1.04
6	1.217	0.75	0.75	0.9	PC	1.04

werden. Die weiteren Parameter bzw. deren Faktoren sind dabei für $E^c_{L,RE}/E^c_{RE}$ möglichst niedrig, für E^c_{RE}/E^c_{FE} und $P^{sat}_{RE}/P^{sat}_{FE}$ möglichst hoch. In Tab. 7.8 ist dies in kompakter Weise dargestellt.

Für die zugehörigen $d^*_{33} - V_{FE}$-Kurven, dargestellt in Abb. 7.7, lassen sich die folgenden Beobachtungen machen: Bis zu 40 % V_{FE} steigen alle Kurven nahezu linear an. No. 1 und No. 6 fallen bei weiterer Steigerung des Volumengehalts stark ab, währen No. 2 und No. 3 moderat abnehmen. Diese Kurven weisen einen ausgeprägten Knick auf. Für No. 4 und No. 5 sind hingegen kontinuierlicheren Übergänge zu beobachten. Ab 70 % liegen die Kurven exakt aufeinander und verhalten sich bei weiterer Steigerung exakt linear.

Die technische Anwendung von Mehrlagenkompositen als Aktuator erzwingt eine Dehnungskopplung, d.h. eine mechanische Verbindung der Komponenten. Daher sollen nun ausschließlich PSC-gekoppelte Kurven betrachtet werden. Aus den Tabellen E.8 bis E.10 ist zu entnehmen, dass zwölf der 54 PSC-gekoppelte Kurven einen Faktor von $d^*_{33,max}/d^*_{33,RE} > 1$ aufweisen. Für sechs Kurven sind relative Überhöhungen von mehr als 5 % und für drei Kurven für mehr als 10 % zu beobachten. Die maximale Überhöhung beträgt 15.2 %. Wie zuvor werden nun die sechs höchsten $d^*_{33,max}/d^*_{33,RE}$-Quotienten und deren zugehörigen Parameter für die PSC-Kopplung betrachtet. Diese sind in Tab. 7.9 aufgeführt. Das Maximum des Überhöhungseffekts wird mit möglichst hohen

Tabelle 7.8: Optimierung des Überhöhungseffekts

Parameter	Variation	Optimierung
$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	$\{0.75,\ 0.85,\ 0.95\}$	$\Downarrow$
$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	$\{0.65,\ 0.75,\ 0.85\}$	$\Uparrow$
$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	$\{0.70,\ 0.80,\ 0.90\}$	$\Uparrow$
Kopplung	PC / PSC	PC
$\frac{E_{max}}{E^{sat}_{FE}}$	$\{1.04,\ 1.19\}$	1.04

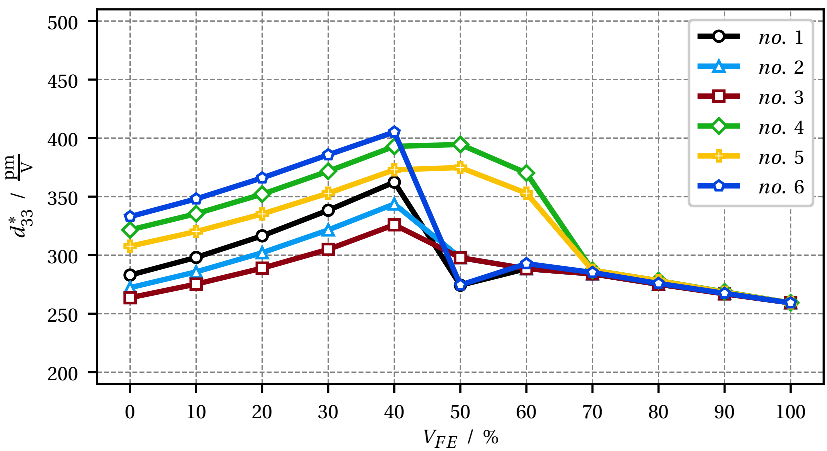


Abbildung 7.7: Darstellung von d^*_{33} über V_{FE} für die sechs höchsten $d^*_{33,max}/d^*_{33,RE}$-Werte aller variierten Parameterkombinationen.

Tabelle 7.9: Die sechs höchsten $d^*_{33,max}/d^*_{33,RE}$-Quotienten und deren Parameter mit PSC-Kopplung

no.	$\frac{d^*_{33,max}}{d^*_{33,RE}}$	$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	coupling	$\frac{E_{max}}{E^{sat}_{FE}}$
10	1.152	0.95	0.85	0.9	PSC	1.04
11	1.149	0.85	0.85	0.9	PSC	1.04
12	1.135	0.75	0.85	0.9	PSC	1.04
22	1.087	0.95	0.85	0.8	PSC	1.04
23	1.071	0.85	0.85	0.8	PSC	1.04
26	1.064	0.75	0.85	0.8	PSC	1.04

Parametern bzw. deren Faktoren und einer aufgebrachten elektrischen Belastung von $E_{max}/E^{sat}_{FE} = 1.04$ erreicht. In Tab. 7.10 ist dies in kompakter Weise dargestellt. Diese sechs zugehörigen $d^*_{33} - V_{FE}$-Kurven, abgebildet in Abb. 7.8, weisen alle vergleichbare Verläufe mit zunächst annähernd konstanten Werten, gefolgt von einem geringen linearen Anstieg auf. Im Anschluss daran zeigen die Kurven No. 12, 22, 23 und 26 ein in etwa konstantes Plateau, die Kurven No. 10 und 11 steigen jedoch weiter an. Alle Kurven verringern sich nach 70 % deutlich und liegen ab 90 % übereinander. Wie bereits diskutiert, fällt die Überhöhung durch die zusätzliche Dehnungskopplung, bedingt durch die zusätzliche mechanische Zwängung zwischen den Lagen, geringer aus und die Maximalwerte verschieben sich in Richtung 100 % V_{FE}, also in Richtung des Ferroelektrikums.

Tabelle 7.10: Optimierung des Überhöhungseffekts für die PSC-Kopplung

Parameter	Variation	Optimierung
$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	{0.75, 0.85, 0.95}	$\Uparrow$
$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	{0.65, 0.75, 0.85}	$\Uparrow$
$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	{0.70, 0.80, 0.90}	$\Uparrow$
$\frac{E_{max}}{E^{sat}_{FE}}$	{1.04, 1.19}	1.04

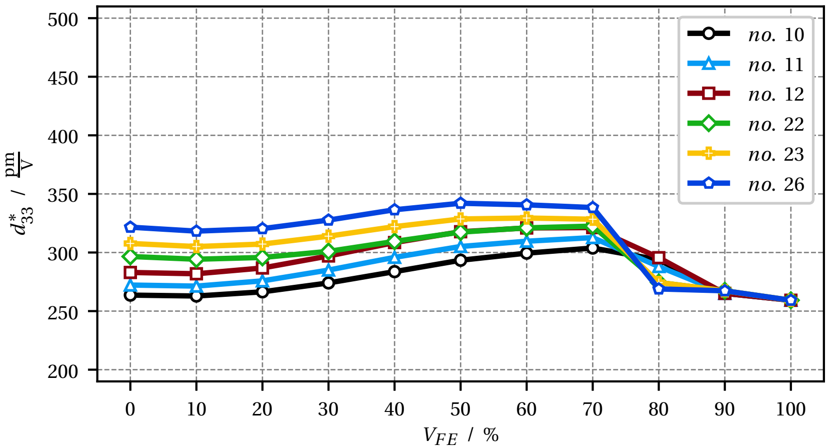


Abbildung 7.8: Darstellung von d^*_{33} über V_{FE} für die sechs höchsten $d^*_{33,max}/d^*_{33,RE}$-Werte der PSC-gekoppelten Parameterkombinationen.

7.4 Ursache des Überhöhungseffekts

Die Einflüsse der Parametervariationen und die bestmöglichen Kombinationen der Parameter zur Optimierung des Überhöhungseffektes wurden ausführlich diskutiert und sind nun bekannt. Bisher unbeantwortet geblieben, ist die Frage nach der Ursache des Überhöhungseffekts. Um diese Frage zu beantworten, werden beispielhaft die globalen $P-E$- und $S-E$-Diagramme der rein polarisationsgekoppelten $d_{33}^{*}-V_{FE}$-Kurve mit der maximalen relativen Überhöhung und der Belastung mit $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.04$ sowie deren Pendant mit $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.19$ betrachtet. Im Anschluss daran wird ebenfalls der Einfluss der zusätzlichen Dehnungskopplung auf die globalen $P-E$- und $S-E$-Diagramme bei ansonsten konstant gehaltenen Parametern untersucht.

Die genannten $d_{33}^{*}-V_{FE}$-Kurven sind in Abb. 7.9 dargestellt und besitzen eine relative Überhöhung von 28.1 % bzw. 6.7 %. Der generelle Einfluss der elektrischen Belastung auf die Form der $d_{33}^{*}-V_{FE}$-Kurven wurde bereits ausführlich

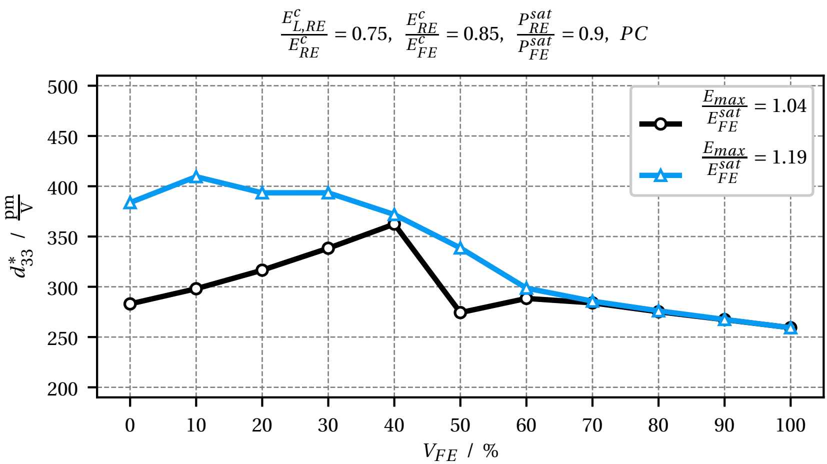


Abbildung 7.9: $d_{33}^{*}-V_{FE}$-Kurve der PC-gekoppelten Komposite mit den Belastungen $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.04$ (schwarz) und 1.19 (blau).

diskutiert. Die Erhöhung der elektrischen Belastung führt zu einer Erhöhung der maximalen d_{33}^*-Werte, reduziert jedoch gleichzeitig die relative Überhöhung. Hier wird nun auf die zugehörigen globalen $P-E$- und $S-E$-Kurvenscharen eingegangen, die in Abb. 7.10 und 7.11 dargestellt sind. Allgemein zeigen sich darin deutlich die Einflüsse des Volumengehalts und der elektrischen Belastung. Im ersten Belastungszyklus (Neukurve) erreichen die Komposite mit der Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.04$ ab dem Volumengehalt 50 % V_{FE} einen gesättigten Zustand, bei der Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.19$ bereits ab 20 % V_{FE}. Das Erreichen der Sättigung ist dabei durch die Änderung der Steigung in den $P-E$- und $S-E$-Kurvenscharen erkennbar. Bei den ausschließlich polarisationsgekoppelten Kompositen liegen die Übergänge in den gesättigten Zustand in den $S-E$-Diagrammen auf einer Gerade, die in den entsprechenden Abbildungen 7.10 und 7.11 schwarz gepunktet dargestellt sind. Anhand dieser Geraden lässt sich abschätzen, welche externe elektrische Belastung zum Erreichen der Sättigung notwendig ist. Im zweiten Belastungszyklus lassen sich in den $P-E$- und $S-E$-Kurvenscharen bis zu bestimmten Volumenanteilen Subhysteresen beobachten. Für die Kurvenscharen der Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.04$ sind Hysteresen zu beobachten, die mit steigendem Volumengehalt größer werden und bei 40 % V_{FE} die maximale Größe erreichen. Ab 50 % V_{FE} reicht die aufgebrachte elektrische Belastung nicht mehr aus, um ein nichtlineares Verhalten und somit Hysteresen zu erzeugen. Die Komposite bleiben folglich bei der Be- und Entlastung des zweiten Zyklus auf demselben linearen Pfad. Bei weiterer Erhöhung des Volumengehalts ändern sich die Steigungen nur noch minimal. Die Kurvenscharen für die Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.19$ zeigen ebenfalls Hysteresen, die bereits bei 10 % V_{FE} die maximale Größe erreichen und bei der Erhöhung des Volumengehalts bis einschließlich 50 % V_{FE} kleiner werden. Ab 60 % V_{FE} treten keine Hysteresen mehr auf und die Komposite verhalten sich linear. Es besteht ein direkter Zusammenhang zwischen den d_{33}^*-Werten, und somit des Überhöhungseffekts, mit der Größe der Hysteresen. Das Ausbleiben der Hysteresen verwundert zunächst, da ein lineares Verhalten bei der Belastung der einzelnen Komponenten, nicht aber im Komposit zu erwarten ist. Der Blick auf die inneren elektrischen Felder der Komponenten, die für die PC-gekoppelten Komposite jeweils über deren Schichtdicken konstant

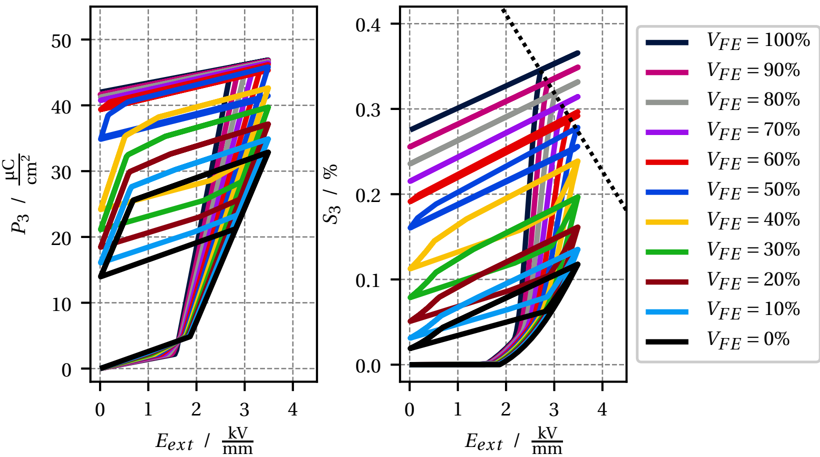


Abbildung 7.10: Globale $P-E$- und $S-E$-Kurvenscharen der PC-gekoppelten Komposite mit der Belastung $\frac{E_{max}}{E_{FE}^{sat}} = 1.04$.

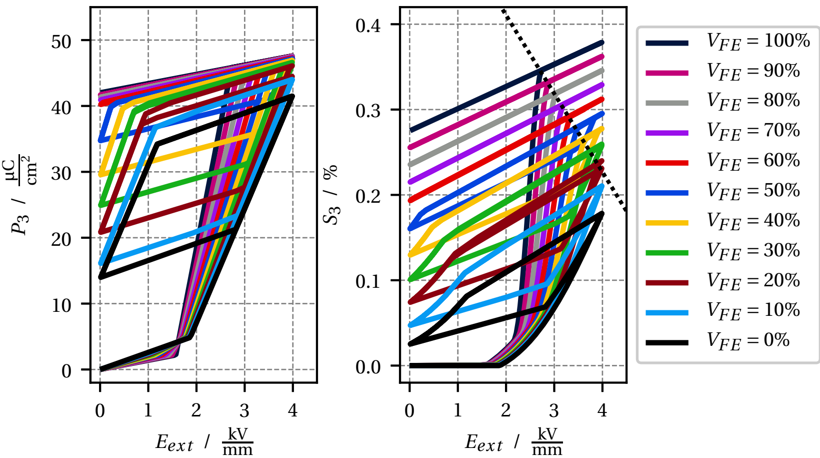


Abbildung 7.11: Globale $P-E$- und $S-E$-Kurvenscharen der PC-gekoppelten Komposite mit der Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.19$.

sind, liefert hierfür eine Erklärung. In den Abbildungen E.20 und E.21 sind die zugehörigen inneren elektrischen Felder über der Zeit für die Belastung mit $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.04$ bzw. mit $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.19$ für alle untersuchten Volumenanteile aufgetragen. Zum besseren Verständnis wird an dieser Stelle nur eine Auswahl mit den Volumenanteilen $V_{FE} \in \{0\,\%, 10\,\%, 40\,\%, 90\,\%\}$ in den Abbildungen 7.12 und 7.13 präsentiert. Da die elektrische Leitfähigkeit nicht berücksichtigt ist, hat die Belastungsdauer keine physikalische Bedeutung. Links und rechts sind die inneren Felder des Ferroelektrikums bzw. des modifizierten Relaxors dargestellt. Die vorgegebene Belastung entspricht den Feldern bei 0 % V_{FE} und 100 % V_{FE}. Das Ausbleiben der Hysteresen zeigt sich bei den entsprechenden Volumenanteilen durch lineares Verhalten der inneren elektrischen Felder in beiden Komponenten, wie es zwischen t_2 und t_4 beobachtet werden kann. In diesem Zeitintervall findet in den Kompositen keine Evolution der inneren Variablen statt, weswegen nur lineare $P-E$- und $S-E$-Verläufe zu beobachten sind. Bezüglich der Verteilung der inneren elektrischen Felder im Zweilagenkomposit lässt sich allgemein feststellen, dass diese für das Ferroelektrikum niedriger und für den Relaxor höher als die äußere aufgebrachte elektrische Belastung sind.

Wie wirkt sich die zusätzliche Dehnungskopplung auf die $P-E$- und $S-E$-Kurvenscharen und die Hysteresen aus? Dies wird nun anhand der vorherigen Parameterkombinationen und der zusätzlichen Dehnungskopplung untersucht. Die sich ergebenden $d_{33}^* - V_{FE}$-Kurven sind in Abb. 7.14 dargestellt und besitzen eine relative Überhöhung von 13.5 % bzw. von 0 % und somit keine Überhöhung. Wie bereits beschrieben, werden durch die zusätzliche Dehnungskopplung und damit verbundenen inneren Zwangskräfte deutlich geringere Überhöhungen der $d_{33}^* - V_{FE}$-Kurven. Die Dehnungskopplung beeinflusst ebenso die Form dieser Kurven sowie die Position des Maximums. Die zugehörigen globalen $P-E$- und $S-E$-Kurvenscharen der $d_{33}^* - V_{FE}$-Kurven sind in Abb. 7.15 bzw. 7.16 dargestellt. Für die Belastung mit $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.04$ werden nach dem erster Halbzyklus im Vergleich zu den PC-gekoppelten Kompositen etwas geringere Werte der Polarisation erreicht. Lediglich für

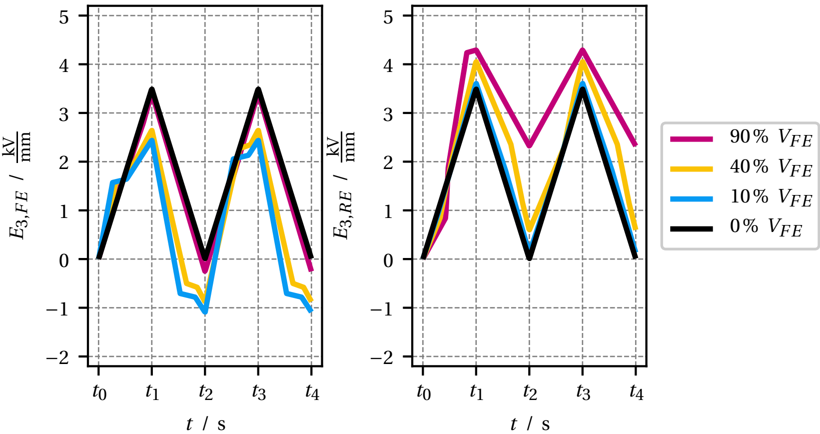


Abbildung 7.12: Darstellung der zu Abb. 7.10 zugehörigen inneren elektrischen Felder über der Zeit des Ferroelektrikums (links) und des modifizierten Relaxors (rechts) für ausgewählte Volumenanteile V_{FE} und der Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.04$.

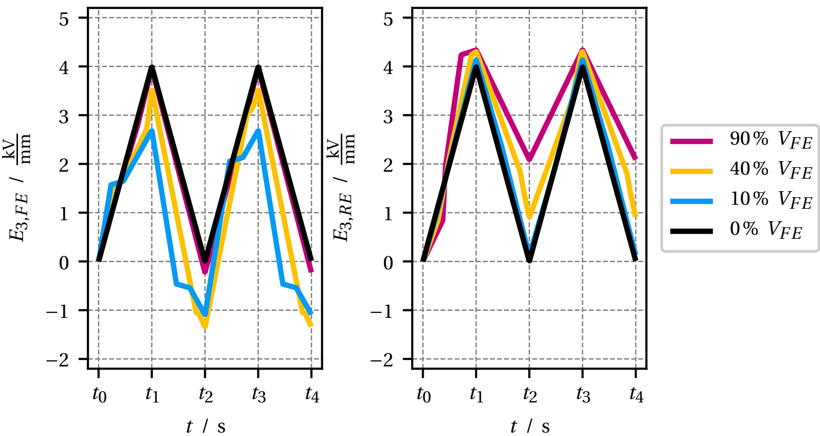


Abbildung 7.13: Darstellung der zu Abb. 7.11 zugehörigen inneren elektrischen Felder über der Zeit des Ferroelektrikums (links) und des modifizierten Relaxors (rechts) für ausgewählte Volumenanteile V_{FE} und der Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.19$.

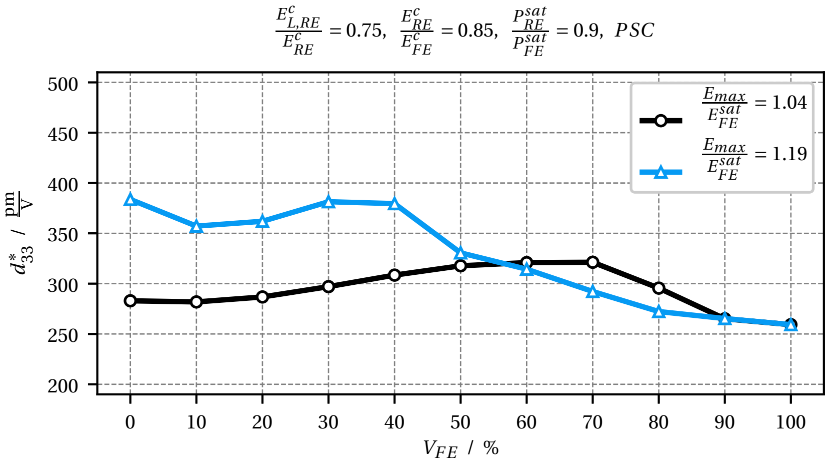


Abbildung 7.14: $d^*_{33} - V_{FE}$-Kurve der PSC-gekoppelten Komposite mit den Belastungen $E_{max}/E^{sat}_{FE} = 1.04$ (schwarz) und 1.19 (blau).

Komposite mit 80 % und 90 % V_{FE} können gesättigte Zustände erreicht werden. Bei der ersten Entlastung verhalten sich die Komposite bis einschließlich 80 % V_{FE} Volumengehalt nichtlinear. Im zweiten Belastungszyklus lassen sich Hysteresen beobachten, die bis zu einem Volumenanteil von 70 % V_{FE} geringfügig größer werden. Bei 80 % V_{FE} reicht die aufgebrachte Belastung nicht mehr aus, um den Polarisationswert der ersten Belastung zu erreichen. Bei höherem Volumenanteil treten keine Hysteresen mehr auf. Die $S-E$-Hysteresen weisen, bedingt durch die verschiedenen teilgepolten Zustände und folglich aufgrund der Ordnungsübergangsvariable, unterschiedliche maximale Dehnungswerte auf, die mit zunehmendem Volumenanteil V_{FE} steigen. Die Differenzen zwischen den Dehnungsmaxima und –minima sind jedoch sehr ähnlich, weswegen die d^*_{33}-Werte nur geringfügig voneinander abweichen. Für die Belastung mit $E_{max}/E^{sat}_{FE} = 1.19$ erreichen die Komposite mit einem Volumengehalt ab 40 % V_{FE} nach dem ersten Halbzyklus gesättigte Zustände. Bei der ersten Entlastung zeigen die Komposite bis einschließlich 70 % V_{FE} ein nichtlineares und ab 80 % V_{FE} ein lineares Verhalten. Im zweiten Belastungszyklus

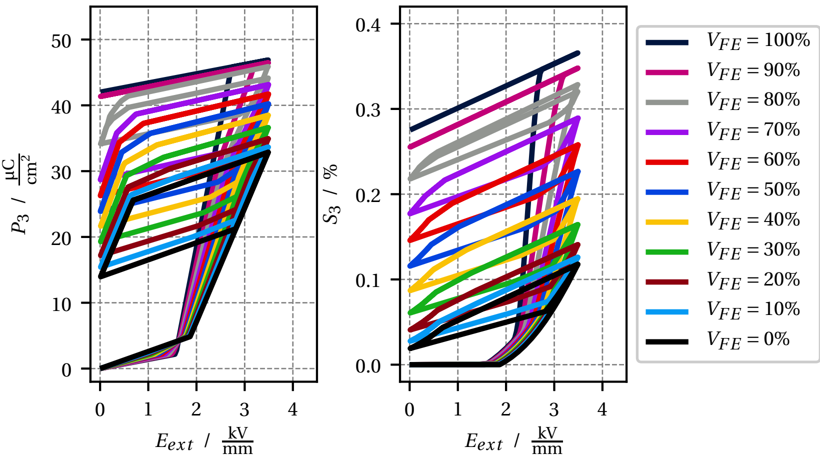


Abbildung 7.15: Globale $P-E$- und $S-E$-Kurvenscharen der PSC-gekoppelten Komposite mit der Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.04$.

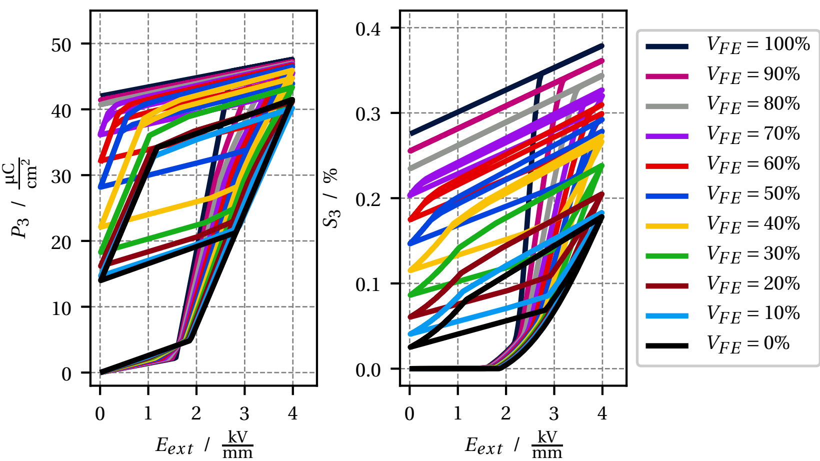


Abbildung 7.16: Globale $P-E$- und $S-E$-Kurvenscharen der PSC-gekoppelten Komposite mit der Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.19$.

lassen sich in den $P-E$- und $S-E$-Kurvenscharen bis einschließlich 70 % V_{FE} Hysteresen beobachten. Diese sind bis einschließlich 40 % V_{FE} in etwa gleich groß und werden mit steigendem Volumenanteil kleiner. Zwischen 40 % und 70 % V_{FE} führt die aufgebrachte Belastung im zweiten Zyklus nicht zum Erreichen der Polarisations- und Dehnungsmaxima aus dem ersten Zyklus. Auf die Darstellung der inneren elektrischen Felder der PSC-gekoppelten Komposite wird verzichtet, da diese nicht mehr über die jeweiligen Schichtdicken konstant sind und dadurch keine leicht verständliche Darstellung möglich ist.

Die beschriebenen Beobachtungen lassen die folgenden Schlüsse zu: Es besteht ein direkter Zusammenhang zwischen den d_{33}^*-Werten und dem Überhöhungseffekt mit der Größe der beobachteten Subhysteresen. Folglich lässt sich der Einfluss des Volumengehalts auf den piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten aus den $S-E$-Kurvenscharen ablesen. Der Überhöhungseffekt sowie der schlagartige Abfall in den $d_{33}^* - V_{FE}$-Kurven werden durch die in den Komponenten wirkenden inneren elektrischen Felder verursacht. Die Polarisationskopplung steuert die Größenverteilung dieser Felder in Abhängigkeit der Volumenanteile und der Materialparameter der Komponenten. Für Komposite mit niedrigen V_{FE}-Volumenanteilen werden zum Erreichen der gesättigten Zustände sehr hohe äußere elektrische Felder benötigt.

7.5 Fazit der Parameterstudie

Der in Experimenten beobachtete Überhöhungseffekt des piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten kann durch die Simulationen dieser Parameterstudie für spezielle Kombinationen der Materialparameter, der Kopplungsart und der aufgebrachten Belastung reproduziert werden. Dieser Effekt erweist sich in den Simulationen als sehr sensitiv. Für die Simulationen des Zweilagenkomposits mit den „realen“ Materialparametern nach Tab. 5.1 gelang dies nicht. Dies könnte an dem stark vereinfachten, abschnittsweise linearen phänomenologischen Materialmodell nach Kap. 4 und damit an dessen Eckigkeit

liegen. Der Vorteil des Materialmodells ist jedoch die überschaubare Anzahl an benötigten Materialparametern. Die Polarisationskopplung und die Höhe der aufgebrachten elektrischen Belastung haben dominierenden Einfluss auf den Überhöhungseffekt des piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten. In dieser Studie wird eine relative Überhöhung gegenüber der einzeln belasteten Komponenten von maximal 28.1 % bei reiner Polarisationskopplung bzw. von 15.2 % bei zusätzlicher Dehnungskopplung erreicht. Für den PSC-gekoppelten Komposit stimmt die in der Parameterstudie maximal erreichte Überhöhung hervorragend mit der experimentell beobachtete Überhöhung von ca. 15 % überein. Die Dehnungskopplung wirkt sich negativ auf den Überhöhungseffekt aus. Erreichen die internen elektrischen Felder zu hohe Werte, so verschwindet der Überhöhungseffekt und es verbleibt eine lineare Abnahme des piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten vom reinen Relaxor hin zum reinen Ferroelektrikum gemäß der Mischungsregel.

8 Zusammenfassung und Ausblick

An den experimentell untersuchten, polarisations- und dehnungsgekoppelten Zweilagenkompositen, bestehend aus den auf Natrium-Bismut-Titanat basierenden Materialien NBT-6BT und NBT-6BT-4KNN, wird gegenüber den reinen Materialien eine Überhöhung des piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten um ca. 15 % beobachtet. Die Ursache dieses Effekts lässt sich experimentell nicht ergründen, da die inneren Feldgrößen messtechnisch nicht zugänglich sind. Um dennoch Einblicke ins Innere der Komposite zu ermöglichen und um den beobachteten Effekt zu verstehen und zu optimieren, werden Simulationen mit der Finite-Elemente-Methode durchgeführt.

Da für die beiden betrachteten Werkstoffe keine adäquaten Materialmodelle existieren, wird ein geeignetes dreidimensionales, vollständig elektromechanisch gekoppeltes Modell entwickelt und an deren Besonderheiten angepasst. Dieses gibt das Verhalten der beiden untersuchten bleifreien Materialien sehr gut wieder, obwohl diese unterschiedliche Charakteristika aufweisen. In diesem Materialmodell sind die experimentell beobachteten Effekte der eingeschnürten Hysteresen, der innere Ordnungsübergang sowie die nicht deviatorischen polarisationsinduzierten irreversiblen Verzerrungen berücksichtigt. Es kann prinzipiell auch zur Beschreibung der herkömmlichen, bleihaltigen ferroelektrischen Werkstoffe verwendet werden, da es uneingeschnürte Hysteresen als Spezialfall beinhaltet.

Die Zeitintegration der geschichtsabhängigen inneren Variablen wird im Rahmen der Finite-Elemente-Methode mit einem Prädiktor-Korrektor-Verfahren durchgeführt. Die Implementierung des entwickelten Materialmodells und der hierfür benötigten gemischten Finite-Elemente-Formulierungen mit und

ohne Berücksichtigung der elektrischen Leitfähigkeit, erfolgt mit dem kommerziellen Programm COMSOL. Hierbei wird das Modul zur gleichungsbasierten Modellierung verwendet. Die realen Zweilagenkomposite werden mit dem Viertel- und dem Säulenmodell durch zwei Finite-Elemente-Modelle mit unterschiedlichen Abstraktionsgraden approximiert.

Mit dem entwickelten Berechnungswerkzeug sind räumliche und zeitliche Einblicke in die Feldgrößen der unterschiedlich gekoppelten Zweilagenkomposite sowie der Abgleich mit den Experimenten möglich. Untereinander unterscheiden sich die Simulationen mit dem Viertel- und Säulenmodell nur geringfügig voneinander, wobei das Säulenmodell einen geringeren Ressourcenbedarf hat. Die unterschiedlichen Kopplungsarten weichen in der Simulation ebenfalls nur geringfügig voneinander ab. Die simulierten Polarisationshysteresen weisen gegenüber den Experimenten vergleichbare Formen, jedoch höhere Beträge auf. Die Querdehnungshysteresen stimmen, unabhängig von der Kopplungsart, sehr gut überein. Für die Dehnungshysteresen in Belastungsrichtung gilt dies nur für den Komposit mit zusätzlicher Dehnungskopplung. Die Ursache der Abweichung beim Komposit mit reiner Polarisationskopplung wird in einem unvollständigen elektrischen Kontakt zwischen den beiden Lagen und somit im Experiment vermutet.

Der im Experiment beobachtete Überhöhungseffekt des piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten lässt sich durch Simulationen mit den untersuchten Kombinationen aus „realen“ Materialparametern, den beiden Kopplungsarten und der aufgebrachten Belastung nicht bestätigen. Weiterhin wird die Querdehnungsverteilung über die Höhe der Komposite untersucht. Hierbei sind deutliche Abweichungen zwischen den Simulationen und den Experimenten zu beobachten. Diese könnten ebenfalls eine Folge des unvollständiger elektrischen Kontakts in den Experimenten sein. Der elektrisch leitende Kleber erzeugt im Experiment keine vollständige Dehnungskopplung, verbessert den elektrischen Kontakt jedoch deutlich.

Im Inneren der Komposite verbleiben nach dem Polungsprozess hohe elektrische Felder von etwa einem Viertel der maximal aufgebrachten Belastung.

Diese Felder bauen sich unter Berücksichtigung der elektrischen Leitfähigkeit, trotz der sehr geringen Leitwerte der beiden Materialien, im Laufe der Zeit vollständig ab.

Zur Bestätigung des experimentell beobachteten Überhöhungseffekts und dessen Optimierung wird eine Parameterstudie, in der Volumenanteil, Materialparameter, Kopplungsart und elektrische Belastung variiert werden, durchgeführt. Für für geeignete Variationen kann der Überhöhungseffekt bestätigt werden. Dessen Ursache liegt in der Polarisationskopplung und dem Auftreten von Subhysteresen begründet. Gegenüber den einzeln belasteten Komponenten ist bei reiner Polarisationskopplung eine relative Überhöhung von maximal 28.1 % und bei zusätzlicher Dehnungskopplung von 15.2 % zu beobachten. Entgegen der experimentellen Beobachtung wirkt sich die zusätzliche Dehnungskopplung in den Simulationen negativ aus. Für den PSC-gekoppelten Komposit stimmt die in der Parameterstudie maximal erreichte Überhöhung hervorragend mit der experimentell ermittelten Überhöhung von ca. 15 % überein. Aus den durchgeführten Untersuchungen lassen sich Empfehlungen zur gezielten Weiterentwicklung des NBT-basierten Materialsystems ableiten.

Das vorgestellte Berechnungswerkzeug kann zukünftig zur rechnergestützten Weiterentwicklung des untersuchten Materialsystems durch z.B. Variation weiterer Parameter verwendet oder an andere Materialsysteme angepasst werden. Bisher sind einige physikalischen Größen im Materialmodell, z.B. der Permittivitäts- und der Steifigkeitstensor, vereinfachend als konstante und isotrope Feldgrößen angenommen. Diese Größen könnten in Abhängigkeit der inneren Variablen nichtkonstant sowie anisotrop definiert werden und dadurch die Realität besser erfassen. Ebenso denkbar ist die numerische Untersuchung von komplexeren Kompositen, um die aufwendige und langwierige Erstellung der realen Proben zu umgehen.

Literaturverzeichnis

[1] F. Ebrahimi, *Piezoelectric Materials and Devices : Practice and Applications*. IntechOpen, London, 2013.

[2] J. Zelenka, *Piezoelectric resonators and their applications*, ser. Studies in electrical and electronic engineering ; 24. Elsevier, Amsterdam, 1986.

[3] S. J. Rupitsch, *Piezoelectric sensors and actuators: Fundamentals and applications*. Springer, Berlin, Heidelberg, 2018.

[4] P. Curie and J. Curie, "Développement par compression de l'électricité polaire dans les cristaux hémièdres à faces inclinées," *Bulletin de la Société minéralogique de France*, vol. 3, no. 4, pp. 90–93, 1880.

[5] B. Jaffe, W. R. Cook, and H. Jaffe, *Piezoelectric ceramics*. Academic Press, London, 1971.

[6] N. Sezer and M. Koç, "A comprehensive review on the state-of-the-art of piezoelectric energy harvesting," *Nano Energy*, vol. 80, p. 105567, 2021.

[7] P. Sarrazin, S. Chipera, D. Bish, D. Blake, and D. Vaniman, "Vibrating sample holder for XRD analysis with minimal sample preparation," *Advances in X-ray Analysis*, vol. 48, pp. 156–164, 2005.

[8] X. Gao, J. Yang, J. Wu, X. Xin, Z. Li, X. Yuan, X. Shen, and S. Dong, "Piezoelectric Actuators and Motors: Materials, Designs, and Applications," *Advanced Materials Technologies*, vol. 5, no. 1, p. 1900716, 2020.

[9] S. Mohith, A. R. Upadhya, K. P. Navin, S. Kulkarni, and M. Rao, "Recent trends in piezoelectric actuators for precision motion and their applications: A review," *Smart Materials and Structures*, vol. 30, no. 1, p. 013002, 2020.

[10] A. J. Moulson and J. M. Herbert, *Electroceramics: materials, properties, applications*. Wiley, Chichester, 2003.

[11] M. Lines and A. Glass, *Principles and Applications of Ferroelectrics and Related Materials*, ser. International series of monographs on physics. Oxford University Press, Oxford, 2001.

[12] W. Jo, R. Dittmer, M. Acosta, J. Zang, C. Groh, E. Sapper, K. Wang, and J. Rödel, "Giant electric-field-induced strains in lead-free ceramics for actuator applications–status and perspective," *Journal of Electroceramics*, vol. 29, no. 1, pp. 71–93, 2012.

[13] K. Uchino, Ed., *Advanced piezoelectric materials : science and technology*, ser. Woodhead Publishing in materials. Woodhead Publishing, Oxford, 2010.

[14] Europäische Kommission, "RICHTLINIE 2002/95/EG DES EUROPÄISCHEN PARLAMENTS UND DES RATES vom 27. Januar 2003 zur Beschränkung der Verwendung bestimmter gefährlicher Stoffe in Elektro- und Elektronikgeräten," *Amtsblatt der Europäischen Union*, vol. L 37, pp. 19–23, 2003.

[15] Europäische Kommission, "BESCHLUSS DER KOMMISSION vom 8. September 2011 zur Änderung des Anhangs der Richtlinie 2002/95/EG des Europäischen Parlaments und des Rates hinsichtlich der ausgenommenen Verwendungen von Blei oder Cadmium zwecks Anpassung an den technischen Fortschritt," *Amtsblatt der Europäischen Union*, vol. L 234, pp. 44–45, 2011.

[16] Europäische Kommission, "RICHTLINIE 2011/65/EU DES EUROPÄISCHEN PARLAMENTS UND DES RATES vom 8. Juni 2011 zur

Beschränkung der Verwendung bestimmter gefährlicher Stoffe in Elektro- und Elektronikgeräten (Neufassung)," *Amtsblatt der Europäischen Union*, vol. L 174, pp. 88–110, 2011.

[17] H. Kulkarni, K. Zohaib, A. Khusru, and K. S. Aiyappa, "Application of piezoelectric technology in automotive systems," *Materials Today: Proceedings*, vol. 5, no. 10, pp. 21 299–21 304, 2018.

[18] L. Wang, J. Lowrie, G. Ngaile, and T. Fang, "High injection pressure diesel sprays from a piezoelectric fuel injector," *Applied Thermal Engineering*, vol. 152, pp. 807–824, 2019.

[19] J.-F. Li, K. Wang, F.-Y. Zhu, L.-Q. Cheng, and F.-Z. Yao, "$(K,Na)NbO_3$-based lead-free piezoceramics: Fundamental aspects, processing technologies, and remaining challenges," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 96, no. 12, pp. 3677–3696, 2013.

[20] S.-T. Zhang, A. B. Kounga, E. Aulbach, H. Ehrenberg, and J. Rödel, "Giant strain in lead-free piezoceramics $Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO_3$-$BaTiO_3$-$K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$ system," *Applied Physics Letters*, no. 11, pp. 112 906–1, 2007, sFB 595 Cooperation A1, B4.

[21] W. Liu and X. Ren, "Large piezoelectric effect in Pb-free ceramics," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 103, p. 257602, 2009.

[22] T. Takenaka, K. Maruyama, and K. Sakata, "$(Bi_{1/2}Na_{1/2})TiO_3$-$BaTiO_3$ system for lead-free piezoelectric ceramics," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 30, no. Part 1, No. 9B, pp. 2236–2239, 1991.

[23] K. Sakata and Y. Masuda, "Ferroelectric and antiferroelectric properties of $(Na_{0.5}Bi_{0.5})TiO_3$-$SrTiO_3$ solid solution ceramics," *Ferroelectrics*, vol. 7, no. 1, pp. 347–349, 1974.

[24] E.-M. Anton, W. Jo, J. Trodahl, D. Damjanovic, and J. Rödel, "Effect of $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$ on properties at and off the morphotropic phase boundary in $Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO_3$-$Bi_{0.5}K_{0.5}TiO_3$ ceramics," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 50, no. 5, p. 055802, 2011.

[25] P. Panda, “Environmental friendly lead-free piezoelectric materials,” *Journal of materials science*, vol. 44, no. 19, pp. 5049–5062, 2009.

[26] W. Jo, T. Granzow, E. Aulbach, J. Rödel, and D. Damjanovic, “Origin of the large strain response in $(K_{0.5}Na_{0.5})NbO_3$-modified $(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO_3$-$BaTiO_3$ lead-free piezoceramics,” *Journal of Applied Physics*, vol. 105, no. 9, p. 094102, 2009.

[27] D. S. Lee, D. H. Lim, M. S. Kim, K. H. Kim, and S. J. Jeong, “Electric field-induced deformation behavior in mixed $Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO_3$ and $Bi_{0.5}(Na_{0.75}K_{0.25})_{0.5}TiO_3 - BiAlO_3$,” *Applied Physics Letters*, vol. 99, no. 6, p. 062906, 2011.

[28] D. S. Lee, S. Jong Jeong, M. Soo Kim, and J. Hyuk Koh, “Electric field induced polarization and strain of Bi-based ceramic composites,” *Journal of Applied Physics*, vol. 112, no. 12, p. 124109, 2012.

[29] C. Groh, D. J. Franzbach, W. Jo, K. G. Webber, J. Kling, L. A. Schmitt, H.-J. Kleebe, S.-J. Jeong, J.-S. Lee, and J. Rödel, “Relaxor/Ferroelectric Composites: A Solution in the Quest for Practically Viable Lead-Free Incipient Piezoceramics,” *Advanced Functional Materials*, vol. 24, no. 3, pp. 356–362, 2014.

[30] R. Newnham, D. Skinner, and L. Cross, “Connectivity and piezoelectric-pyroelectric composites,” *Materials Research Bulletin*, vol. 13, no. 5, pp. 525–536, 1978.

[31] A. Ayrikyan, O. Prach, N. H. Khansur, S. Keller, S. Yasui, M. Itoh, O. Sakata, K. Durst, and K. G. Webber, “Investigation of residual stress in lead-free BNT-based ceramic/ceramic composites,” *Acta Materialia*, vol. 148, pp. 432–441, 2018.

[32] A. Ayrikyan, F. Weyland, S. Steiner, M. Duerrschnabel, L. Molina-Luna, J. Koruza, and K. G. Webber, “Multilayer lead-free piezoceramic composites: Influence of co-firing on microstructure and

electromechanical behavior," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 100, no. 8, pp. 3673–3683, 2017.

[33] A. Ayrikyan, V. Rojas, L. Molina-Luna, M. Acosta, J. Koruza, and K. G. Webber, "Enhancing electromechanical properties of lead-free ferroelectrics with bilayer ceramic/ceramic composites," *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, vol. 62, no. 6, pp. 997–1006, 2015.

[34] D. Brewster, "Observation on the pyro-electricity in minerals," *Edinbg. J. of Science*, vol. 1, no. 2, pp. 208–218, 1825.

[35] J. Valasek, "Piezo-electric and allied phenomena in rochelle salt," *Physical review*, vol. 17, no. 4, p. 475, 1921.

[36] W. P. Mason, "Electrostrictive effect in barium titanate ceramics," *Phys. Rev.*, vol. 74, pp. 1134–1147, 1948.

[37] S. Roberts, "Dielectric properties of lead zirconate and barium-lead zirconate," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 33, no. 2, pp. 63–66, 1950.

[38] D. Berlincourt and H. Jaffe, "Elastic and piezoelectric coefficients of single-crystal barium titanate," *Phys. Rev.*, vol. 111, pp. 143–148, 1958.

[39] E. Fukada, "Piezoelectricity as a fundamental property of wood," *Wood Science and Technology*, vol. 2, no. 4, pp. 299–307, 1968.

[40] W. S. Williams, "Piezoelectric effects in biological materials," *Ferroelectrics*, vol. 41, no. 1, pp. 225–246, 1982.

[41] R. Lay, G. S. Deijs, and J. Malmström, "The intrinsic piezoelectric properties of materials–a review with a focus on biological materials," *RSC Advances*, vol. 11, no. 49, pp. 30 657–30 673, 2021.

[42] E. Feldtkeller, *Dielektrische und magnetische Materialeigenschaften.* Bibliographisches Institut, Mannheim, 1973, vol. 1:.

[43] E. Feldtkeller, *Dielektrische und magnetische Materialeigenschaften.* Bibliographisches Institut, Mannheim, 1974, vol. 2:.

[44] T. Ikeda, *Fundamentals of piezoelectricity.* Oxford: Oxford University Press, 1990.

[45] L. E. Cross, *Ferroelectric Ceramics: Tailoring Properties for Specific Applications.* Birkhäuser, Basel, 1993.

[46] M. Kamlah, "Ferroelectric and ferroelastic piezoceramics – modeling of electromechanical hysteresis phenomena," *Continuum Mechanics and Thermodynamics,* vol. 13, no. 4, pp. 219–268, 2001.

[47] H. Mueller, "Properties of rochelle salt," *Phys. Rev.,* vol. 47, pp. 175–191, 1935.

[48] P. G. Lucuta, "Ferroelectric-domain structure in piezoelectric ceramics," *Journal of the American Ceramic Society,* vol. 72, no. 6, pp. 933–937, 1989.

[49] Y. Saito, H. Takao, T. Tani, T. Nonoyama, K. Takatori, T. Homma, T. Nagaya, and M. Nakamura, "Lead-free piezoceramics," *Nature,* vol. 432, no. 7013, pp. 84–87, 2004.

[50] D. Chen, "Experimental investigation of strain distributions and polarization in lead-based and lead-free ferroelectrics," Dissertation, Fakultät für Maschinenbau, Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Karlsruhe, [2017].

[51] J. Rödel, W. Jo, K. T. P. Seifert, E.-M. Anton, T. Granzow, and D. Damjanovic, "Perspective on the development of lead-free piezoceramics," *Journal of the American Ceramic Society,* vol. 92, no. 6, pp. 1153–1177, 2009.

[52] J. Rödel, K. G. Webber, R. Dittmer, W. Jo, M. Kimura, and D. Damjanovic, "Transferring lead-free piezoelectric ceramics into application," *Journal of the European Ceramic Society,* vol. 35, no. 6, pp. 1659–1681, 2015.

[53] E. Aksel and J. L. Jones, “Advances in lead-free piezoelectric materials for sensors and actuators,” *Sensors*, vol. 10, no. 3, pp. 1935–1954, 2010.

[54] T. R. Shrout and S. J. Zhang, “Lead-free piezoelectric ceramics: Alternatives for PZT?” *Journal of Electroceramics*, vol. 19, no. 1, pp. 113–126, 2007.

[55] L. E. Cross, “Relaxor ferroelectrics,” *Ferroelectrics*, vol. 76, no. 1, pp. 241–267, 1987.

[56] A. Lebon, H. Dammak, and G. Calvarin, “Tetragonal and rhombohedral induced polar order from the relaxor state of $PbZn_{1/3}Nb_{2/3}O_3$,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 15, no. 19, pp. 3069–3078, 2003.

[57] G. Xu, Z. Zhong, Y. Bing, Z.-G. Ye, and G. Shirane, “Electric-field-induced redistribution of polar nano-regions in a relaxor ferroelectric,” *Nature materials*, vol. 5, no. 2, pp. 134–140, 2006.

[58] J. E. Daniels, W. Jo, J. Rödel, and J. L. Jones, “Electric-field-induced phase transformation at a lead-free morphotropic phase boundary: Case study in a $0.93(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO_3$-$0.07BaTiO_3$ piezoelectric ceramic,” *Applied Physics Letters*, vol. 95, no. 3, p. 032904, 2009.

[59] X. Tan, C. Ma, J. Frederick, S. Beckman, and K. G. Webber, “The antiferroelectric - ferroelectric phase transition in lead-containing and lead-free perovskite ceramics,” *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 94, no. 12, pp. 4091–4107, 2011.

[60] C. Ma and X. Tan, “In situ transmission electron microscopy study on the phase transitionsin lead-free $(1-x)(Bi_{1/2}Na_{1/2})TiO_3 - xBaTiO_3$ ceramics,” *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 94, no. 11, pp. 4040–4044, 2011.

[61] F. H. Schader, Z. Wang, M. Hinterstein, J. E. Daniels, and K. G. Webber, “Stress-modulated relaxor-to-ferroelectric transition in lead-free $(Na_{1/2}Bi_{1/2})TiO_3-BaTiO_3$ ferroelectrics,” *Phys. Rev. B*, vol. 93, p. 134111, 2016.

[62] K. G. Webber, M. Vögler, N. H. Khansur, B. Kaeswurm, J. E. Daniels, and F. H. Schader, "Review of the mechanical and fracture behavior of perovskite lead-free ferroelectrics for actuator applications," *Smart Materials and Structures*, vol. 26, no. 6, p. 063001, 2017.

[63] R. Garg, B. N. Rao, A. Senyshyn, P. S. R. Krishna, and R. Ranjan, "Lead-free piezoelectric system $(Na_{0.5}Bi_{0.5})TiO_3$-$BaTiO_3$: Equilibrium structures and irreversible structural transformations driven by electric field and mechanical impact," *Phys. Rev. B*, vol. 88, p. 014103, 2013.

[64] P. Peng, H. Nie, W. Guo, F. Cao, G. Wang, and X. Dong, "Pressure-induced ferroelectric-relaxor phase transition in $(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO_3$-based ceramics," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 102, no. 5, pp. 2569–2577, 2019.

[65] H. Foronda, M. Deluca, E. Aksel, J. S. Forrester, and J. L. Jones, "Thermally-induced loss of piezoelectricity in ferroelectric $Na_{0.5}Bi_{0.5}TiO_3 - BaTiO_3$," *Materials Letters*, vol. 115, pp. 132–135, 2014.

[66] W. Jo, T. Granzow, E. Aulbach, J. Rödel, and D. Damjanovic, "Origin of the large strain response in $(K_{0.5}Na_{0.5})NbO_3$-modified $(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO_3 - BaTiO_3$ lead-free piezoceramics," *Journal of Applied Physics*, vol. 105, no. 9, p. 094102, 2009.

[67] W. Kleemann, "The relaxor enigma – charge disorder and random fields in ferroelectrics," in *Frontiers of ferroelectricity*. Springer, Boston, MA, 2006, pp. 129–136.

[68] A. Bokov and Z.-G. Ye, "Recent progress in relaxor ferroelectrics with perovskite structure," *Journal of materials science*, vol. 41, no. 1, pp. 31–52, 2006.

[69] C. W. Ahn, C.-H. Hong, B.-Y. Choi *et al.*, "A brief review on relaxor ferroelectrics and selected issues in lead-free relaxors," *Journal of the Korean Physical Society*, vol. 68, no. 12, pp. 1481–1494, 2016.

[70] J. D. Jackson, *Classical electrodynamics*, 3rd ed. Wiley, New York, 1999.

[71] G. A. Maugin, *Continuum mechanics of electromagnetic solids*, ser. North Holland series in applied mathematics and mechanics ; 33. North-Holland, Amsterdam, 1988.

[72] G. A. Holzapfel, *Nonlinear solid mechanics : a continuum approach for engineering*. Wiley, Chichester, 2008.

[73] H. Schwaab, "Nichtlineare Modellierung von Ferroelektrika unter Berücksichtigung der elektrischen Leitfähigkeit," Dissertation, Fakultät für Maschinenbau, Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Karlsruhe, 2012.

[74] H. Allik and T. J. R. Hughes, "Finite element method for piezoelectric vibration," *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, vol. 2, no. 2, pp. 151–157, 1970.

[75] J. E. Harper, "Analysis of nonlinear electroelastic continua with electric conduction," Master's thesis, Massachusetts Institute of Technology, 1999.

[76] J. E. Harper and N. W. Hagood, "Analysis of deformable electroelastic devices: cumulative effects of weak electric conduction," in *Smart Structures and Materials 2000: Active Materials: Behavior and Mechanics*, vol. 3992. SPIE, 2000, pp. 25 – 39.

[77] F. A. Streich, A. Martin, K. G. Webber, and M. Kamlah, "Macroscopic constitutive model for ergodic and non-ergodic lead-free relaxors," *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, vol. 33, no. 8, pp. 1002–1017, 2022.

[78] A. Martin, J. G. Maier, F. Streich, M. Kamlah, and K. G. Webber, "Investigating the importance of strain-coupling in lead-free 2-2 relaxor/ferroelectric composites with digital image correlation," *Smart Materials and Structures*, vol. 31, no. 7, p. 075009, 2022.

[79] A. Haar, “Zur Theorie der orthogonalen Funktionensysteme,” *Math. Ann.*, vol. 69, pp. 331–371, 1910.

[80] K. Webber, E. Aulbach, T. Key, M. Marsilius, T. Granzow, and J. Rödel, “Temperature-dependent ferroelastic switching of soft lead zirconate titanate,” *Acta Materialia*, vol. 57, no. 15, pp. 4614–4623, 2009.

[81] R. Dittmer, W. Jo, J. Rödel, S. Kalinin, and N. Balke, “Nanoscale insight into lead-free BNT-BT-xKNN,” *Advanced Functional Materials*, vol. 22, no. 20, pp. 4208–4215, 2012.

[82] A. Martin, H. Uršič, T. Rojac, and K. G. Webber, “Direct observation of the stress-induced domain structure in lead-free $(Na_{1/2}Bi_{1/2})TiO_3$-based ceramics,” *Applied Physics Letters*, vol. 114, no. 5, p. 052901, 2019.

[83] J. Wang, S.-Q. Shi, L.-Q. Chen, Y. Li, and T.-Y. Zhang, “Phase-field simulations of ferroelectric/ferroelastic polarization switching,” *Acta Materialia*, vol. 52, no. 3, pp. 749–764, 2004.

[84] A. K. Soh, Y. C. Song, and Y. Ni, “Phase field simulations of hysteresis and butterfly loops in ferroelectrics subjected to electro-mechanical coupled loading,” *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 89, no. 2, pp. 652–661, 2006.

[85] D. Schrade, R. Mueller, B. Xu, and D. Gross, “Domain evolution in ferroelectric materials: A continuum phase field model and finite element implementation,” *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, vol. 196, no. 41, pp. 4365–4374, 2007.

[86] J. Wang, M. Kamlah, T.-Y. Zhang, Y. Li, and L.-Q. Chen, “Size-dependent polarization distribution in ferroelectric nanostructures: Phase field simulations,” *Applied Physics Letters*, vol. 92, no. 16, p. 162905, 2008.

[87] B. Völker, C. M. Landis, and M. Kamlah, “Multiscale modeling for ferroelectric materials: identification of the phase-field model’s free

energy for PZT from atomistic simulations," *Smart Materials and Structures*, vol. 21, no. 3, p. 035025, 2012.

[88] B. Völker and M. Kamlah, "Large-signal analysis of typical ferroelectric domain structures using phase-field modeling," *Smart Materials and Structures*, vol. 21, no. 5, p. 055013, 2012.

[89] P. Fedeli, M. Kamlah, and A. Frangi, "Phase-field modeling of domain evolution in ferroelectric materials in the presence of defects," *Smart Materials and Structures*, vol. 28, no. 3, p. 035021, 2019.

[90] D. J. Franzbach, "Field induced phase transitions in ferroelectric materials," Dissertation, Fachbereich Material- und Geowissenschaften, Technische Universität Darmstadt, 2014.

[91] S. Wang, A. Ayrikyan, H. Zhang, K. G. Webber, and B.-X. Xu, "Phase-field study of electromechanical coupling in lead-free relaxor/ferroelectric-layered composites," *Advanced Electronic Materials*, vol. 5, no. 2, p. 1800710, 2019.

[92] K. G. Webber, H. C. Robinson, G. A. Rossetti, and C. S. Lynch, "A distributed step-like switching model of the continuous field-driven phase transformations observed in PMN–xPT relaxor ferroelectric single crystals," *Acta Materialia*, vol. 56, no. 12, pp. 2744–2749, 2008.

[93] J. Huber, "Micromechanical modelling of ferroelectrics," *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, vol. 9, no. 3, pp. 100 – 106, 2005.

[94] P. Chen and P. Peercy, "One dimensional dynamic electromechanical constitutive relations of ferroelectric materials," *Acta Mechanica*, vol. 31, no. 3-4, pp. 231–241, 1979.

[95] K. Ghandi and N. W. Hagood, "Hybrid finite element model for phase transitions in nonlinear electromechanically coupled material," in *Smart Structures and Materials 1997: Mathematics and Control in*

Smart Structures, vol. 3039. International Society for Optics and Photonics, 1997, pp. 97–112.

[96] C. S. Lynch, “On the development of multiaxial phenomenological constitutive laws for ferroelectric ceramics,” *Journal of intelligent material systems and structures*, vol. 9, no. 7, pp. 555–563, 1998.

[97] C. M. Landis, “Fully coupled, multi-axial, symmetric constitutive laws for polycrystalline ferroelectric ceramics,” *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 50, no. 1, pp. 127–152, 2002.

[98] M. Kamlah and Z. Wang, “A thermodynamically and microscopically motivated constitutive model for piezoceramics,” *Computational Materials Science*, vol. 28, no. 3, pp. 409 – 418, 2003, twelfth International Workshop on Computational Mechanics of Materials.

[99] M. Elhadrouz, T. B. Zineb, and E. Patoor, “Constitutive law for ferroelastic and ferroelectric piezoceramics,” *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, vol. 16, no. 3, pp. 221–236, 2005.

[100] S. Klinkel, “A phenomenological constitutive model for ferroelastic and ferroelectric hysteresis effects in ferroelectric ceramics,” *International Journal of Solids and Structures*, vol. 43, no. 22-23, pp. 7197–7222, 2006.

[101] H. Schwaab, H. Grünbichler, P. Supancic, and M. Kamlah, “Macroscopical non-linear material model for ferroelectric materials inside a hybrid finite element formulation,” *International Journal of Solids and Structures*, vol. 49, no. 3, pp. 457 – 469, 2012.

[102] K. Linnemann, “Magnetostriktive und piezoelektrische Materialien – Konstitutive Modellierung und Finite-Element-Formulierung,” Dissertation, Fakultät für Bauingenieur-, Geo- und Umweltwissenschaften, Universität Fridericiana Karlsruhe (TH), 2008.

[103] J. C. Simo and T. J. R. Hughes, *Computational inelasticity*, ser. Interdisciplinary applied mathematics ; 7 : Mechanics and materials. Springer, New York, 2000.

[104] C. Morin, Z. Moumni, and W. Zaki, “Thermomechanical coupling in shape memory alloys under cyclic loadings: Experimental analysis and constitutive modeling,” *International Journal of Plasticity*, vol. 27, no. 12, pp. 1959 – 1980, 2011, Special Issue In Honor of Nobutada Ohno.

[105] C. Mittelstedt and W. Becker, “Interlaminar stress concentrations in layered structures: Part I - A selective literature survey on the free-edge effect since 1967,” *Journal of Composite Materials*, vol. 38, no. 12, pp. 1037–1062, 2004.

[106] C. Mittelstedt and W. Becker, “Interlaminar stress concentrations in layered structures: Part II - Closed-form analysis of stresses at laminated rectangular wedges with arbitrary non-orthotropic layup,” *Journal of Composite Materials*, vol. 38, no. 12, pp. 1063–1090, 2004.

Tabellenverzeichnis

A Herleitungen zum makroskopischen Materialmodell für bleifreie Ferroelektrika

Für das in Kap. 4 aufgeführte Materialmodell werden hier die Umrechnung zwischen verschiedenen Materialparametern und die Herleitungen der vier Korrektoren für den Radial-Return-Mapping-Algorithmus dokumentiert.

A.1 Umrechnung von Materialparametern

Für das phänomenologische Materialmodell wird der Materialparameter c^d zur Beschreibung der „kinematischen Verfestigung" in der Umklappfunktion nach Gl. (4.22) benötigt. Dieser beschreibt den Zusammenhang zwischen D und P^i während der Evolution der irreversiblen Polarisation und muss daher dimensionslos sein. Aus Versuchen kann der Materialparameter c^e bestimmt werden, der P^i und E über die zeitlichen Ableitungen zu

$$\dot{P}^i = \frac{1}{c^e}\dot{E} \tag{A.1}$$

miteinander verknüpft. Um die Vergleichbarkeit mit anderen Modellen wie z.B. [46] sicher zu stellen, wird die Umrechnung der Materialparameter aufgeführt. Die Versuche zur Bestimmung der Materialparameter werden meist

einachsial durchgeführt. Daher werden hier nur eindimensionale Formeln der physikalischen Zusammenhänge für die Polarisation

$$P = \kappa^T E + dT + P^i \tag{A.2}$$

sowie für die dielektrische Verschiebung

$$D = (\epsilon_0 + \kappa^T)E + dT + P^i \tag{A.3}$$

verwendet. Die Parameter sollen für eine elektrische Belastung ohne mechanische Belastung gelten. Somit kann der Kopplungstherm dT in den zeitlichen Ableitungen

$$\dot{P} = \kappa^T \dot{E} + \dot{P}^i = \left(\kappa^T + \frac{1}{c^e}\right)\dot{E} \tag{A.4}$$

und

$$\dot{D} = (\epsilon_0 + \kappa^T)\dot{E} + \dot{P}^i = \left((\epsilon_0 + \kappa^T) + \frac{1}{c^e}\right)\dot{E} \tag{A.5}$$

entfallen.

Für die $P-E$-Hysterese ergibt sich die Steigung während der Evolution der irreversiblen Polarisation zu

$$c^p = \frac{\dot{P}}{\dot{E}} = \frac{\left(\kappa^T + \frac{1}{c^e}\right)\dot{E}}{\dot{E}} = \kappa^T + \frac{1}{c^e}. \tag{A.6}$$

Entsprechend ergibt sich die Steigung in der $D-E$-Hysterese zu

$$c^{de} = \frac{\dot{D}}{\dot{E}} = \frac{\left((\epsilon_0 + \kappa^T) + \frac{1}{c^e}\right)\dot{E}}{\frac{1}{c^e}\dot{E}} = (\epsilon_0 + \kappa^T)c^e + 1. \tag{A.7}$$

Für die dielektrische Umklappfunktion, Gl. (4.22), wird der dimensionslose Parameter

$$c^d = \frac{\dot{D}}{\dot{P}^i} = \frac{\left((\epsilon_0 + \kappa^T) + \frac{1}{c^e}\right)\dot{E}}{\dot{E}} = (\epsilon_0 + \kappa^T) + \frac{1}{c^e} \tag{A.8}$$

benötigt, der die Verknüpfung zwischen D und P^i beschreibt.

Die Benennung des Parameters c^d in der dielektrischen Umklappfunktion, Gl. (4.22), wurde aus der vorherigen Arbeit [73] übernommen. Die dort aufgeführte Definition von c^d entspricht fälschlicherweise dem, was hier als c^{de} definiert ist.

Für die Umrechnung der elektrischen Koerzitivfeldstärke E^c in eine kritische dielektrische Verschiebung D^c wird ebenfalls die Definition von D ohne den Kopplungstherm betrachtet und $E = E^c$ eingesetzt. Es folgt

$$D^c = (\epsilon_0 + \kappa^T)E^c. \tag{A.9}$$

A.2 Korrektoren für den Radial-Return-Mapping-Algorithmus

Für die zeitliche Integration der stückweise definierten, ratenunabhängigen, gewöhnlichen Differentialgleichung nach den Gleichungen (4.27) und (4.55) wird in Kap. 4.3 der Radial-Return-Mapping-Algorithmus verwendet. Zur Verbesserung der Lesbarkeit werden die Symbole $\vec{A}$, $\vec{N}$ bzw. $\boldsymbol{A}$, $\boldsymbol{B}$ und $\boldsymbol{N}$ nachfolgend für die jeweilige Herleitung neu definiert.

A.2.1 Korrektor für dielektrisches Umklappkriterium

Für diese Herleitung gilt ${}^{n+1}\vec{D}_L = \vec{D}_L$, ${}^{n}\vec{P}^i_L = \vec{P}^i_L$, ${}^{n}\vec{e}^{P^i} = \vec{e}^{P^i}$ und ${}^{n}\boldsymbol{T}^{\text{Dev}} = \boldsymbol{T}^{\text{Dev}}$. Wie in Gl. (4.63) beschrieben, gilt die Definition des Korrektors $\Delta\vec{P}^{i,f}_L = \lambda_{f^d_L} \frac{\partial f^d_L}{\partial \vec{D}_L}$ sowie des Normalenvektors $\frac{\partial f^d_L}{\partial \vec{D}_L} = \frac{\vec{A}}{\|\vec{A}\|} = \vec{N}$ mit der Abkürzung $\vec{A} = \vec{D}_L - c^d \cdot \vec{P}^i_L$ und der Eigenschaft $\vec{N} \cdot \vec{N} = 1$. Durch Einsetzen des Korrektors in die diskrete

dielektrische Umklappfunktion f_L^d, Gl. (4.62), folgt die diskrete Konsistenzbedingung

$$f_L^d\left(\lambda_{f_L^d}\right) = f_L^d\left(\vec{D}_L, \vec{P}_L^i + \Delta\vec{P}_L^{i,f}, \tilde{D}_L^c\right) \tag{A.10}$$

$$= \left\|\vec{D}_L - c^d\left(\vec{P}_L^i + \Delta\vec{P}_L^{i,f}\right)\right\| - \tilde{D}_L^c \tag{A.11}$$

$$= \left\|\vec{D}_L - c^d\vec{P}_L^i - c^d\Delta\vec{P}_L^{i,f}\right\| - \tilde{D}_L^c \tag{A.12}$$

$$= \left\|\vec{A} - c^d\lambda_{f_L^d}\vec{N}\right\| - \tilde{D}_L^c = 0. \tag{A.13}$$

und nach Multiplizieren der Gleichung getreu dem Schema $(a-b)\cdot(a+b) = a^2 - b^2$

$$\left(\vec{A} - c^d\,\vec{N}\lambda_{f_L^d}\right)\cdot\left(\vec{A} - c^d\,\vec{N}\lambda_{f_L^d}\right) - \left(\tilde{D}_L^c\right)^2 \tag{A.14}$$

$$= \vec{A}\cdot\vec{A} - 2\,c^d\,\vec{A}\cdot\vec{N}\lambda_{f_L^d} + \vec{N}\cdot\vec{N}\left(c^d\right)^2\left(\lambda_{f_L^d}\right)^2 - \left(\tilde{D}_L^c\right)^2 \tag{A.15}$$

$$= \left(c^d\right)^2\left(\lambda_{f_L^d}\right)^2 - 2\,c^d\,\vec{A}\cdot\vec{N}\lambda_{f_L^d} + \vec{A}\cdot\vec{A} - \left(\tilde{D}_L^c\right)^2 = 0, \tag{A.16}$$

Teilen durch $\left(c^d\right)^2$ und Lösen der daraus entstandenen quadratischen Gleichung

$$\left(\lambda_{f_L^d}\right)^2 - 2\frac{\vec{A}\cdot\vec{N}}{c^d}\lambda_{f_L^d} + \frac{\vec{A}\cdot\vec{A}}{\left(c^d\right)^2} - \frac{\left(\tilde{D}_L^c\right)^2}{\left(c^d\right)^2} = 0 \tag{A.17}$$

errechnet sich die gesuchte Größe zu

$$\lambda_{f_L^d} = \frac{\|\vec{A}\|}{c^d} \pm \sqrt{\frac{\|\vec{A}\|\cdot\|\vec{A}\|}{\left(c^d\right)^2} - \frac{\vec{A}\cdot\vec{A}}{\left(c^d\right)^2} + \frac{\left(\tilde{D}_L^c\right)^2}{\left(c^d\right)^2}} = \frac{1}{c^d}\left(\|\vec{A}\| \pm \tilde{D}_L^c\right). \tag{A.18}$$

Nur die betragsmäßig kleinere Lösung ist relevant (→ −). Nach Einsetzen der Abkürzung und Umformen, ergibt sich der gesuchte Parameter zu

$$\lambda_{f_L^d} = \frac{1}{c^d}\left(\left\|\vec{D}_L - c^d \cdot \vec{P}_L^i\right\| - \tilde{D}_L^c\right) \tag{A.19}$$

$$= \frac{1}{c^d}\, f_L^d\left(\vec{D}_L, \vec{P}_L^i, \tilde{D}_L^c\right). \tag{A.20}$$

A.2.2 Korrektor für dielektrisches Sättigungskriterium

Für diese Herleitung gilt ${}^n\vec{P}_L^i = \vec{P}_L^i$. Wie in Gl. (4.67) beschrieben, gilt die Definition des Korrektors $\Delta\vec{P}_L^{i,h} = \lambda_{h_L^d}\left(-\frac{\partial h_L^d}{\partial \vec{P}_L^i}\right)$ und des Normalenvektors $\frac{\partial h_L^d}{\partial \vec{P}_L^i} = \frac{\vec{P}_L^i + \Delta\vec{P}_L^{i,f}}{\left\|\vec{P}_L^i + \Delta\vec{P}_L^{i,f}\right\|} = \frac{\vec{A}}{\|\vec{A}\|} = \vec{N}$ mit der Abkürzung $\vec{A} = (\vec{P}_L^i + \Delta\vec{P}_L^{i,f})$ und der Eigenschaft $\vec{N} \cdot \vec{N} = 1$. Durch Einsetzen des Korrektors in die diskrete dielektrische Sättigungsfunktion h_L^d, Gl. (4.66), folgt die diskrete Konsistenzbedingung zu

$$h_L^d\left(\lambda_{h_L^d}\right) = h_L^d\left(\vec{P}_L^i + \Delta\vec{P}_L^{i,f} + \Delta\vec{P}_L^{i,h}, P_L^{sat}\right) \tag{A.21}$$

$$= \left\|\vec{P}_L^i + \Delta\vec{P}_L^{i,f} + \Delta\vec{P}^{i,h}\right\|_L - P_L^{sat} \tag{A.22}$$

$$= \left\|\vec{A} + \lambda_{h_L^d}\left(-\vec{N}\right)\right\| - P_L^{sat} = 0. \tag{A.23}$$

Nach Multiplizieren der Gleichung getreu dem Schema $(a-b)\cdot(a+b) = a^2 - b^2$

$$\left(\vec{A} - \lambda_{h_L^d}\vec{N}\right)\cdot\left(\vec{A} - \lambda_{h_L^d}\vec{N}\right) - \left(P_L^{sat}\right)^2 \tag{A.24}$$

$$= \vec{A}\cdot\vec{A} - 2\,\vec{A}\cdot\vec{N}\,\lambda_{h_L^d} + \vec{N}\cdot\vec{N}\left(\lambda_{h_L^d}\right)^2 - \left(P_L^{sat}\right)^2 \tag{A.25}$$

$$= \vec{N}\cdot\vec{N}\left(\lambda_{h_L^d}\right)^2 - 2\,\vec{A}\cdot\vec{N}\,\lambda_{h^d} + \vec{A}\cdot\vec{A} - \left(P_L^{sat}\right)^2 = 0, \tag{A.26}$$

und dem Lösen der quadratischen Gleichung mit $\vec{N} \cdot \vec{N} = 1$ und $\vec{A} \cdot \vec{N} = \|\vec{A}\|$ errechnet sich die gesuchte Größe zu

$$\lambda_{h_L^d} = \|\vec{A}\| \pm \sqrt{\|\vec{A}\| \cdot \|\vec{A}\| - \vec{A} \cdot \vec{A} + \left(P_L^{sat}\right)^2} = \|\vec{A}\| \pm P_L^{sat}. \tag{A.27}$$

Nur die betragsmäßig kleinere Lösung ist relevant ($\rightarrow -$). Nach Einsetzen der Abkürzung und Umformen, ergibt sich der gesuchte Parameter zu

$$\lambda_{h_L^d} = \left\| \vec{P}_L^i + \Delta \vec{P}_L^{i,f} \right\| - P_L^{sat} \tag{A.28}$$

$$= h_L^d \left(\vec{P}_L^i + \Delta \vec{P}_L^{i,f}, P_L^{sat} \right). \tag{A.29}$$

A.2.3 Korrektor für ferroelastisches Umklappkriterium

Der Korrektor $\Delta \boldsymbol{S}_L^{im,f} = \lambda_{f_L^m} \frac{\partial f_L^m}{\partial \boldsymbol{T}_L}$ wird wie in Gl. (4.79) beschrieben definiert. Für den Richtungstensor gilt $\frac{\partial f_L^m}{\partial \boldsymbol{T}_L} = \frac{\left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_L - c^{m.n}\boldsymbol{S}_L^{im}\right)^{\text{Dev}}}{\left\|\left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_L - c^{m.n}\boldsymbol{S}_L^{im}\right)^{\text{Dev}}\right\|} = \boldsymbol{N}$ mit dem Normalentensor $\boldsymbol{N}$, dessen Produkt mit sich selbst $\boldsymbol{N} : \boldsymbol{N} = 1$ ergibt. Für die Herleitung von $\lambda_{f_L^m}$ werden die folgenden Beziehungen benötigt, da die Umklappfunktion den lokalen Spannungsdeviator $\boldsymbol{T}_L^{\text{Dev}} = \boldsymbol{T}_L - \frac{1}{3}\,\text{tr}\,(\boldsymbol{T}_L) \cdot \boldsymbol{I}$ nach Gl. (4.50) beinhaltet, jedoch nach dem Spannungstensor $\boldsymbol{T}_L$ abgeleitet wird. Daher muss die Kettenregel

$$\frac{\partial f_L^m}{\partial \boldsymbol{T}_L} = \frac{\partial f_L^m}{\partial \boldsymbol{T}_L^{\text{Dev}}} : \frac{\partial \boldsymbol{T}_L^{\text{Dev}}}{\partial \boldsymbol{T}_L} = \frac{\partial f_L^m}{\partial \boldsymbol{T}_L^{\text{Dev}}} : \left(\mathbb{I} - \frac{1}{3} \boldsymbol{I} \otimes \boldsymbol{I} \right) \tag{A.30}$$

angewandt werden, wobei $\frac{\partial \boldsymbol{T}_L^{\text{Dev}}}{\partial \boldsymbol{T}_L} = \left(\mathbb{I} - \frac{1}{3}\boldsymbol{I} \otimes \boldsymbol{I}\right)$ und $\mathbb{I}$ der Einheitstensor vierter Stufe ist. Da $\frac{\partial f_L^m}{\partial \boldsymbol{T}_L^{\text{Dev}}} = \frac{\left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_L - c^{m.n}\boldsymbol{S}_L^{im}\right)^{\text{Dev}}}{\left\|\left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_L - c^{m.n}\boldsymbol{S}_L^{im}\right)^{\text{Dev}}\right\|} = \tilde{\boldsymbol{N}}$ nur deviatorische Anteile besitzt, wird ersichtlich, dass $\tilde{\boldsymbol{N}} : \left(\mathbb{I} - \frac{1}{3}\boldsymbol{I} \otimes \boldsymbol{I}\right) = \boldsymbol{N}$ und somit $\frac{\partial f_L^m}{\partial \boldsymbol{T}_L^{\text{Dev}}} = \frac{\partial f_L^m}{\partial \boldsymbol{T}_L}$ gelten muss. Um die Notation zu vereinfachen, gilt für die folgende Herleitung: ${}^{n+1}\boldsymbol{S}_L = \boldsymbol{S}_L$; ${}^{n+1}\boldsymbol{S}_L^{ip} = \boldsymbol{S}_L^{ip}$; ${}^{n}\boldsymbol{S}_L^{im} = \boldsymbol{S}_L^{im}$; ${}^{n+1}\vec{D}_L = \vec{D}_L$; ${}^{n+1}\vec{P}_L^i = \vec{P}_L^i$; ${}^{n+1}\mathbb{C}^D = \mathbb{C}^D$; ${}^{n+1}\mathbb{h} = \mathbb{h}$

sowie ${}^{n}\hat{T}^{c}_{L} = \hat{T}^{c}_{L}$. Durch Einsetzen des Korrektors in die diskrete mechanische Umklappfunktion f^{m}_{L}, Gl. (4.78), folgt die diskrete Konsistenzbedingung

$$f^{m}_{L}\left(\lambda_{f^{m}_{L}}\right) = f^{m}_{L}\left(\boldsymbol{S}_{L}, \boldsymbol{S}^{ip}_{L}, \boldsymbol{S}^{im}_{L} + \Delta\boldsymbol{S}^{im,f}_{L}, \vec{D}_{L}, \vec{P}^{i}_{L}\right) \tag{A.31}$$

$$= \left\| \left(\mathbb{C}^{D} : \left(\boldsymbol{S}_{L} - \boldsymbol{S}^{ip}_{L} - \left(\boldsymbol{S}^{im}_{L} + \Delta\boldsymbol{S}^{im,f}_{L}\right)\right) - \mathbb{h} \cdot \left(\vec{D}_{L} - \vec{P}^{i}_{L}\right) - c^{m} \cdot \left(\boldsymbol{S}^{im}_{L} + \Delta\boldsymbol{S}^{im,f}_{L}\right)\right)^{\text{Dev}} \right\| - \sqrt{\frac{2}{3}}\,\hat{T}^{c}_{L} \tag{A.32}$$

$$= \left\| \left(\underbrace{\mathbb{C}^{D} : \left(\boldsymbol{S}_{L} - \boldsymbol{S}^{ip}_{L} - \boldsymbol{S}^{im}_{L}\right) - \mathbb{h} \cdot \left(\vec{D}_{L} - \vec{P}^{i}_{L}\right)}_{= {}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_{L}} - c^{m} \cdot \boldsymbol{S}^{im}_{L} - \mathbb{C}^{D} : \Delta\boldsymbol{S}^{im,f}_{L} - c^{m} \cdot \Delta\boldsymbol{S}^{im,f}_{L}\right)^{\text{Dev}} \right\| - \sqrt{\frac{2}{3}}\,\hat{T}^{c}_{L} \tag{A.33}$$

$$= \left\| \left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_{L} - c^{m} \cdot \boldsymbol{S}^{im}_{L} - \mathbb{C}^{D} : \Delta\boldsymbol{S}^{im,f}_{L} - c^{m} \cdot \Delta\boldsymbol{S}^{im,f}_{L}\right)^{\text{Dev}} \right\| - \sqrt{\frac{2}{3}}\,\hat{T}^{c}_{L} \tag{A.34}$$

$$= \left\| \left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_{L} - c^{m} \cdot \boldsymbol{S}^{im}_{L}\right)^{\text{Dev}} - \left(\mathbb{C}^{D} : \Delta\boldsymbol{S}^{im,f}_{L} + c^{m} \cdot \Delta\boldsymbol{S}^{im,f}_{L}\right)^{\text{Dev}} \right\| - \sqrt{\frac{2}{3}}\,\hat{T}^{c}_{L} \tag{A.35}$$

$$= \left\| \left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_{L} - c^{m} \cdot \boldsymbol{S}^{im}_{L}\right)^{\text{Dev}} - \left(\mathbb{C}^{D} : \boldsymbol{N} + c^{m} \cdot \boldsymbol{N}\right)^{\text{Dev}} \lambda_{f^{m}_{L}} \right\| - \sqrt{\frac{2}{3}}\,\hat{T}^{c}_{L} = 0. \tag{A.36}$$

Mit den Abkürzungen

$$\boldsymbol{A} = \left({}^{\text{trial}}\boldsymbol{T}_{L} - c^{m} \cdot \boldsymbol{S}^{im}_{L}\right)^{\text{Dev}} \tag{A.37}$$

und

$$\boldsymbol{B} = \left(\mathbb{C}^{D} : \boldsymbol{N} + c^{m} \cdot \boldsymbol{N}\right)^{\text{Dev}} \tag{A.38}$$

folgt

$$\left\| \boldsymbol{A} - \boldsymbol{B}\,\lambda_{f^{m}_{L}} \right\| - \sqrt{\frac{2}{3}}\,\hat{T}^{c}_{L} = 0, \tag{A.39}$$

und nach Multiplizieren der Gleichung getreu dem Schema $(a-b)\cdot(a+b) = a^2 - b^2$

$$\left(\boldsymbol{A} - \boldsymbol{B}\,\lambda_{f_L^m}\right) : \left(\boldsymbol{A} - \boldsymbol{B}\,\lambda_{f_L^m}\right) - \left(\sqrt{\frac{2}{3}}\,\hat{T}_L^c\right)^2 = 0, \tag{A.40}$$

wobei das vordere Produkt zu

$$\boldsymbol{A} : \boldsymbol{A} - 2\boldsymbol{A} : \boldsymbol{B}\,\lambda_{f_L^m} + \boldsymbol{B} : \boldsymbol{B}\,(\lambda_{f_L^m})^2 - \left(\sqrt{\frac{2}{3}}\,\hat{T}_L^c\right)^2 = 0, \tag{A.41}$$

ausmultipliziert werden kann und nach Umsortieren

$$\boldsymbol{B} : \boldsymbol{B}\left(\lambda_{f_L^m}\right)^2 - 2\boldsymbol{A} : \boldsymbol{B}\,\lambda_{f_L^m} + \boldsymbol{A} : \boldsymbol{A} - \left(\sqrt{\frac{2}{3}}\,\hat{T}_L^c\right)^2 = 0, \tag{A.42}$$

die Standardform einer quadratischen Gleichung entsteht, deren beide Lösungen

$$\lambda_{f_L^m} = \frac{\boldsymbol{A} : \boldsymbol{B} \pm \sqrt{(\boldsymbol{A} : \boldsymbol{B})^2 - (\boldsymbol{B} : \boldsymbol{B})\left(\boldsymbol{A} : \boldsymbol{A} - \left(\sqrt{\frac{2}{3}}\,\hat{T}_L^c\right)^2\right)}}{\boldsymbol{B} : \boldsymbol{B}} \tag{A.43}$$

sind. Auf das Einsetzen von $\boldsymbol{A}$ und $\boldsymbol{N}$ wird der Übersichtlichkeit wegen verzichtet. Nur die betragsmäßig kleinere Lösung ist relevant ($\rightarrow -$) und der gesuchte Parameter ergibt sich zu

$$\lambda_{f_L^m} = \frac{\boldsymbol{A} : \boldsymbol{B} - \sqrt{(\boldsymbol{A} : \boldsymbol{B})^2 - (\boldsymbol{B} : \boldsymbol{B})\left(\boldsymbol{A} : \boldsymbol{A} - \left(\sqrt{\frac{2}{3}}\,\hat{T}_L^c\right)^2\right)}}{\boldsymbol{B} : \boldsymbol{B}}. \tag{A.44}$$

A.2.4 Korrektor für ferroelastisches Sättigungskriterium

Für diese Herleitung gilt ${}^{n}\boldsymbol{S}_L^{im} = \boldsymbol{S}_L^{im}$ und ${}^{n+1}S_L^{sat} = S_L^{sat}$. Wie in Gl. (4.86) beschrieben, gilt die Definition des Korrektors $\Delta\boldsymbol{S}_L^{im,h} = \lambda_{h_L^m}\left(-\frac{\partial h_L^m}{\partial \boldsymbol{S}_L^{im}}\right)$ sowie des Richtungstensors $\frac{\partial h_L^m}{\partial \boldsymbol{S}_L^{im}} = \frac{\boldsymbol{S}_L^{im}+\Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f}}{\left\|\boldsymbol{S}_L^{im}+\Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f}\right\|} = \boldsymbol{N}$ mit der Eigenschaft $\boldsymbol{N}:\boldsymbol{N} = 1$.

Durch Einsetzen des Korrektors in die diskrete mechanische Sättigungsfunktion h_L^m, Gl. (4.85), folgt die diskrete Konsistenzbedingung

$$h_L^m\left(\lambda_{h_L^m}\right) = h_L^m\left(\boldsymbol{S}_L^{im} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,h},\ S_L^{sat}\right) \tag{A.45}$$

$$= \left\|\left(\boldsymbol{S}_L^{im} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,h}\right)^{\mathrm{Dev}}\right\| - \sqrt{\frac{3}{2}}S_L^{sat} \tag{A.46}$$

$$= \left\|\left(\boldsymbol{S}_L^{im} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f} + \lambda_{h_L^m}\left(-\boldsymbol{N}\right)\right)^{\mathrm{Dev}}\right\| - \sqrt{\frac{3}{2}}S_L^{sat} \tag{A.47}$$

$$= \left\|\left(\boldsymbol{A} - \lambda_{h_L^m}\boldsymbol{N}\right)^{\mathrm{Dev}}\right\| - \sqrt{\frac{3}{2}}S_L^{sat} = 0 \tag{A.48}$$

$$\tag{A.49}$$

mit der Abkürzung $\boldsymbol{A} = \left(\boldsymbol{S}_L^{im} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f}\right)^{\mathrm{Dev}} = \left(\boldsymbol{S}_L^{im} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f}\right)$ und der Eigenschaft $\boldsymbol{N}^{\mathrm{Dev}} = \boldsymbol{N}$, da die mechanischen Umklapp- und Sättigungsfunktionen volumenerhaltend sind. Nach Multiplizieren der Gleichung getreu dem Schema $(a-b)\cdot(a+b) = a^2 - b^2$

$$\left(\boldsymbol{A} - \lambda_{h_L^m}\boldsymbol{N}\right)^{\mathrm{Dev}} : \left(\boldsymbol{A} - \lambda_{h_L^m}\boldsymbol{N}\right)^{\mathrm{Dev}} - \left(\sqrt{\frac{3}{2}}S_L^{sat}\right)^2 \tag{A.50}$$

$$= \boldsymbol{A}:\boldsymbol{A} - 2\boldsymbol{A}:\boldsymbol{N}\lambda_{h_L^m} + \left(\lambda_{h_L^m}\right)^2\boldsymbol{N}:\boldsymbol{N} - \left(\sqrt{\frac{3}{2}}S_L^{sat}\right)^2 \tag{A.51}$$

$$= \boldsymbol{N}:\boldsymbol{N}\left(\lambda_{h_L^m}\right)^2 - 2\boldsymbol{A}:\boldsymbol{N}\lambda_{h_L^m} + \boldsymbol{A}:\boldsymbol{A} - \left(\sqrt{\frac{3}{2}}S_L^{sat}\right)^2 = 0 \tag{A.52}$$

mit $\boldsymbol{N} : \boldsymbol{N} = 1$ und $\boldsymbol{A} : \boldsymbol{N} = \|\boldsymbol{A}\|$ folgt die Standardform einer quadratischen Gleichung

$$\left(\lambda_{h_L^m}\right)^2 - 2\,\|\boldsymbol{A}\|\,\lambda_{h_L^m} + \boldsymbol{A} : \boldsymbol{A} - \left(\sqrt{\frac{3}{2}} S_L^{sat}\right)^2 = 0, \tag{A.53}$$

deren beide Lösungen

$$\lambda_{h_L^m} = \|\boldsymbol{A}\| \pm \sqrt{(\|\boldsymbol{A}\|)^2 - \left(\boldsymbol{A} : \boldsymbol{A} - \left(\sqrt{\frac{3}{2}} S_L^{sat}\right)^2\right)} \tag{A.54}$$

$$= \|\boldsymbol{A}\| \pm \sqrt{\boldsymbol{A} : \boldsymbol{A} - \boldsymbol{A} : \boldsymbol{A} + \left(\sqrt{\frac{3}{2}} S_L^{sat}\right)^2} \tag{A.55}$$

$$= \|\boldsymbol{A}\| \pm \sqrt{\frac{3}{2}} S_L^{sat} \tag{A.56}$$

sind. Nur die betragsmäßig kleinere Lösung ist relevant $(\rightarrow -)$. Nach Einsetzen der Abkürzung und Umformen, ergibt sich der gesuchte Parameter zu

$$\lambda_{h_L^m} = \left\|\boldsymbol{S}_L^{im} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f}\right\| - \sqrt{\frac{3}{2}} S_L^{sat} \tag{A.57}$$

$$= h_L^m\left(\boldsymbol{S}_L^{im} + \Delta\boldsymbol{S}_L^{im,f},\, S_L^{sat}\right). \tag{A.58}$$

B Implementierung in Comsol

Zur Implementierung der Ferroelektrizität in das kommerzielle Finite-Elemente-Programm COMSOL wird in dieser Arbeit ausschließlich das Modul zur gleichungsbasierten Modellierung verwendet. Zunächst werden die Freiheitsgrade der Verschiebung $\vec{u} = [u_1, u_2, u_3]^\mathsf{T}$, der dielektrischen Verschiebung $\vec{D} = [D_1, D_2, D_3]^\mathsf{T}$ und des elektrischen Potentials φ sowie die zugehörigen Testfunktionen $\hat{\vec{u}}$, $\hat{\vec{D}}$, und $\hat{\varphi}$ definiert. Die komponentenweise Implementierung der schwachen Form mit bzw. ohne Berücksichtigung der Leitfähigkeit nach den Gleichungen 2.61 - 2.63 bzw. 2.64 - 2.66

$$\int_\Omega T_1 \frac{\partial \hat{u}_1}{\partial x} + T_6 \frac{\partial \hat{u}_1}{\partial y} + T_5 \frac{\partial \hat{u}_1}{\partial z} \,\mathrm{d}\Omega = 0, \tag{B.1}$$

$$\int_\Omega T_6 \frac{\partial \hat{u}_2}{\partial x} + T_2 \frac{\partial \hat{u}_2}{\partial y} + T_4 \frac{\partial \hat{u}_2}{\partial z} \,\mathrm{d}\Omega = 0, \tag{B.2}$$

$$\int_\Omega T_5 \frac{\partial \hat{u}_3}{\partial x} + T_4 \frac{\partial \hat{u}_3}{\partial y} + T_3 \frac{\partial \hat{u}_3}{\partial z} \,\mathrm{d}\Omega = 0, \tag{B.3}$$

$$\int_\Omega \left(E_1 + \frac{\partial \varphi}{\partial x}\right) \hat{D}_1 \,\mathrm{d}\Omega = 0, \tag{B.4}$$

$$\int_\Omega \left(E_2 + \frac{\partial \varphi}{\partial y}\right) \hat{D}_2 \,\mathrm{d}\Omega = 0, \tag{B.5}$$

$$\int_\Omega \left((E_3 + \frac{\partial \varphi}{\partial z}\right) \hat{D}_3 \,\mathrm{d}\Omega = 0, \tag{B.6}$$

$$\begin{aligned}\int_\Omega \Bigg(\left(\left(\frac{\partial D_1}{\partial t} + J_1\right) \frac{\partial \hat{\varphi}}{\partial x} + \left(\frac{\partial D_2}{\partial t} + J_2\right) \frac{\partial \hat{\varphi}}{\partial y} + \left(\frac{\partial D_3}{\partial t} + J3\right) \frac{\partial \hat{\varphi}}{\partial z}\right) \cdot \mathrm{flag}_{cond} \\ + \left(D_1 \frac{\partial \hat{\varphi}}{\partial x} + D_2 \frac{\partial \hat{\varphi}}{\partial y} + D_3 \frac{\partial \hat{\varphi}}{\partial z}\right) \cdot (1 - \mathrm{flag}_{cond}) \,\mathrm{d}\Omega = 0,\end{aligned} \tag{B.7}$$

erfolgt mit der Schnittstelle *Weak Form PDE*. Hierbei wird die elektrische Leitfähigkeit über die boolesche Variable flag_{cond} geschaltet. Mit $\text{flag}_{cond} = 1$ wird diese berücksichtigt, mit $\text{flag}_{cond} = 0$ nicht. Auf diese Weise braucht nur eine schwache Form implementiert werden. Zur Simulation der Komposite werden weder Volumenkräfte noch Trägheitskräfte benötigt. Diese können bei Bedarf einfach über eine *Weak Contribution* berücksichtigt werden. Die Randbedingungen der Verschiebungen und des Potentials werden durch die Vorgabe der entsprechenden Knotenwerte (Dirichlet-Rand) und für mechanische Spannung durch eine „Weak Contribution“ (Neumann-Rand) vorgegeben. Zur Beschreibung des geschichtsabhängigen, nichtlinearen Materialverhaltens bedarf es der inneren Variablen bzw. der Hilfsvariablen aus dem vorherigen Zeitschritt: ${}^n p$, ${}^n\hat{T}^c$, ${}^n\vec{P}^i$, ${}^n\boldsymbol{S}^{im}$ und ${}^n\boldsymbol{T}$. Diese werden als *Weak Contribution (auxilliary variables)* an COMSOL übergeben. Insgesamt ergeben sich unter Ausnutzung der Symmetrie 24 Freiheitsgrade je Knoten. Das zeitdiskrete Materialmodell nach Kap. 4.3 wird in einer komponentenweise definierten Textform einmalig an COMSOL übergeben.

C Elektrische Leitfähigkeit im Zweilagenkomposit

Die elektrische Leitfähigkeit beeinflusst das Verhalten der realen Komposite. Um diesen Effekt ebenfalls in den Simulationen zu berücksichtigen, muss die schwache Form nach den Gleichungen (2.61) - (2.63) verwendet werden. Um die Implementierung zu überprüfen, wird auf eine eindimensionale analytische Lösung zurück gegriffen, die in [75] hergeleitet wird. Diese beschreibt eine aus zwei unterschiedlichen linearen und isotropen dielektrischen Materialien zusammengesetzte elektrische Reihenschaltung mit den Parametern ϵ_1 und ϵ_2, σ_1 und σ_2 und den Abmessungen l_1 und l_2. Darin wirken die elektrischen Felder E_1 und E_2. In Abb. C.1 ist diese Reihenschaltung dargestellt. Auf der unteren und oberen Fläche werden die Potentiale $\varphi(-l_2, t) = 0$ und

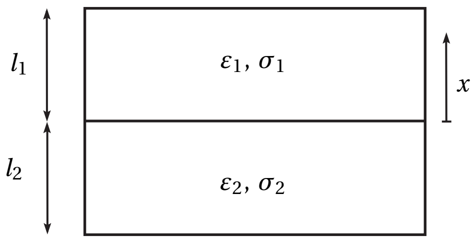


Abbildung C.1: Zweilagiger Komposit zur Beschreibung der analytischen Lösung der elektrischen Leitfähigkeit.

$\varphi(l_1, t) = \varphi(t)$ vorgegeben. Durch Integration der Beziehung

$$E = -\frac{\partial \varphi(t)}{\partial x} \tag{C.1}$$

über die Höhe des Komposits und Einsetzen der Randbedingungen, ergibt sich der Zusammenhang

$$E_1 \cdot l_1 + E_2 \cdot l_2 = \varphi(t). \tag{C.2}$$

An der Grenzfläche zwischen den beiden Materialien gelten die folgenden Übergangsbedingungen

$$[\![\dot{D} + J]\!] = 0 \qquad [\![\varphi]\!] = 0 \qquad [\![D]\!] = w^F, \tag{C.3}$$

die einen stetigen Verlauf des Stromes ($\dot{D} + J$) und des Potentials φ, nicht aber der dielektrischen Verschiebung D fordern. Dies muss im FEM-Modell beachtet werden. Aus der Differenz von D an der Grenzfläche kann die dort wirkende „Oberflächenladungsdichte" w^F berechnet werden. In diesem Kontext ist die Bezeichnung „Grenzflächenladungsdichte" passender. Mit der elektrischen Zeitkonstante

$$\tau = \frac{\epsilon_2 l_1 + \epsilon_1 l_2}{\sigma_2 l_1 + \sigma_1 l_2} \tag{C.4}$$

ergeben sich die zeitabhängigen elektrischen Felder zu

$$E_1(t) = \frac{\sigma_2 \cdot \varphi(t)}{\sigma_2 \cdot l_1 + \sigma_1 \cdot l_2}(1 - \mathrm{e}^{-\frac{t}{\tau}}) + \frac{\epsilon_2 \varphi(t)}{\epsilon_2 l_1 + \epsilon_1 l_2} \mathrm{e}^{-\frac{t}{\tau}} \tag{C.5}$$

und

$$E_2(t) = \frac{\sigma_1 \cdot \varphi(t)}{\sigma_2 \cdot l_1 + \sigma_1 \cdot l_2}(1 - \mathrm{e}^{-\frac{t}{\tau}}) + \frac{\epsilon_1 \varphi(t)}{\epsilon_2 l_1 + \epsilon_1 l_2} \mathrm{e}^{-\frac{t}{\tau}}. \tag{C.6}$$

Mit dem Verhältnis t/τ lässt sich die elektrische Antwort des zusammengesetzten Körpers einordnen. Ein kleines Verhältnis entspricht dem Verhalten eines perfekten Isolators, ein großes Verhältnis dem Verhalten eines elektrischen

Leiters. Die elektrische Zeitkonstante für den zusammen gesetzten Körper τ ist durch die Zeitkonstanten der beiden Materialien $\tau_1 = \epsilon_1/\sigma_1$ und $\tau_2 = \epsilon_2/\sigma_2$ zu

$$\tau_1 \leq \tau \leq \tau_2 \tag{C.7}$$

limitiert.

D Zweilagenkomposit ohne Polarisationskopplung

In diesem Anhang wird der Einfluss der Dehnungskopplung auf einen Zweilagenkomposit mit 50 % V_{FE} ohne Berücksichtigung der Polarisationskopplung untersucht. Die Polarisationskopplung kann nur mit Hilfe einer dritten Elektrode aufgehoben werden, die zwischen den beiden Lagen angeordnet ist. Auf diese Weise können die elektrischen Felder in den Lagen unabhängig voneinander vorgegeben werden. Im folgenden Beispiel werden die elektrischen Felder in den beiden Lagen derart vorgegeben, wie sie im polarisationsgekoppelten Komposit unter einer zyklischen bipolaren Belastung mit $E_{max} = \pm 4\,\text{kV/mm}$ auftreten. Die zeitabhängigen Belastungen der beiden Lagen sind in Abb. D.1 einschließlich des fiktiven äußeren Feldes, dass sich aus den beiden Teilfeldern zuordnen lässt, dargestellt.

Ohne Polarisations- und Dehnungskopplung liegt eine ungekoppelte Struktur vor, bei der die Dehnungen der jeweiligen Lagen zur gesamten Dehnung gemittelt wird. Fraglich erscheint, wie die Dehnungskopplung das Verhalten des Komposits beeinflusst. Dies wird nun anhand des Viertelmodells und den simulierten Dehnungshysteresen in Abb. D.2 diskutiert. Durch die Dehnungskopplung verringern sich die S_3 und S_1 Dehnungen in den Hysteresen gegenüber der ungekoppelten Struktur. Die Abweichungen zwischen den beiden Kopplungsarten nehmen nur während des ersten Halbzyklus zu und bleiben bei der weiteren zyklischen Belastung konstant. Die Form der Hysteresen verändert sich nur unwesentlich. Es zeigt sich, dass der ungekoppelte Komposit eine um 13.6 % höhere S_3 Dehnung sowie eine um 17.8 % betragsmäßig höhere

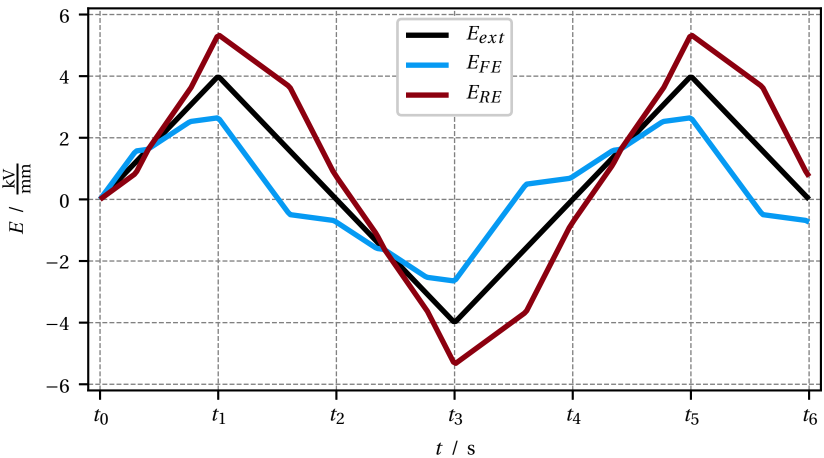


Abbildung D.1: Zeitlicher Verlauf der „imaginären" externen Belastung E_{ext} und der Belastungen des Ferroelektrikums E_{FE} und des Relaxors E_{RE}.

S_1 Dehnung erreicht. Somit wirkt sich die Dehnungskopplung im Zweilagenkomposit negativ auf die erreichbaren Dehnungen in Belastungsrichtung aus. Daher sollte aus mechanischer Sicht eine Dehnungskopplung der Komposite vermieden werden. Herstellungs- und anwendungsbedingt ist dies in realen Kompositen jedoch nicht umsetzbar. Für reale aktorische Anwendungen von geschichteten Kompositen muss daher (i) eine Dehnungskopplung vorliegen und (ii) sind nur Komposite ohne Zwischenelektroden, d.h. mit Polarisationskopplung, sinnvoll.

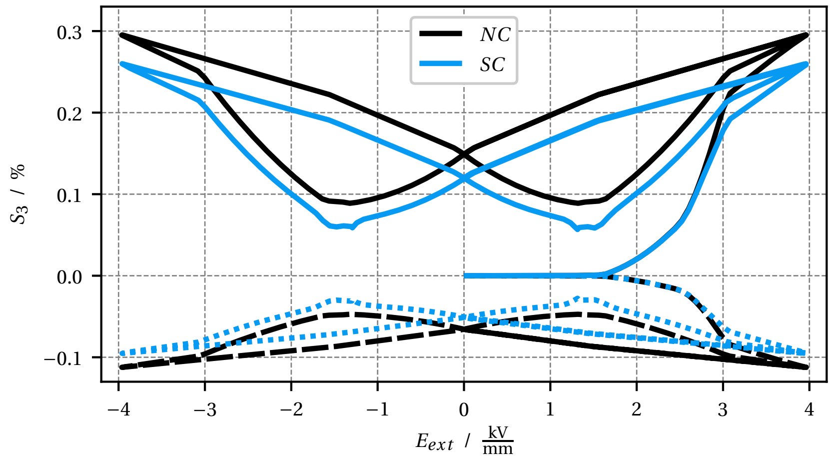


Abbildung D.2: S_3 (durchgehende Linien) und S_1 (unterbrochene Linien) Dehnungshysteresen des ungekoppelten (NC) und des dehnungsgekoppelten (SC) Komposits, aufgetragen über der „imaginären" externen Belastung E_{ext}.

E Resultate der Parameterstudie

In diesem Anhang sind die Ergebnisse der Parameterstudie aus Kap. 7 aufgeführt. Dabei sind die piezoelektrischen Großsignalkoeffizienten d_{33}^{*} über dem Volumengehalt V_{FE} des Relaxors in verschiedenen Kombinationen dargestellt. Die entsprechenden Parametervariationen können den voran gestellten Tabellen entnommen werden. Somit ist die Identifizierung der zugehörigen Parametervariation aller gezeigten Kurve sichergestellt.

Tabelle E.1: Übersicht Cases $E^c_{L,RE}/E^c_{RE}$

E^c_L case	$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	Kopplung	$\frac{Emax}{E^{sat}_{FE}}$
1	0.65	0.7	PC	1.04
2	0.65	0.7	PC	1.19
3	0.65	0.8	PC	1.04
4	0.65	0.8	PC	1.19
5	0.65	0.9	PC	1.04
6	0.65	0.9	PC	1.19
7	0.75	0.7	PC	1.04
8	0.75	0.7	PC	1.19
9	0.75	0.8	PC	1.04
10	0.75	0.8	PC	1.19
11	0.75	0.9	PC	1.04
12	0.75	0.9	PC	1.19
13	0.85	0.7	PC	1.04
14	0.85	0.7	PC	1.19
15	0.85	0.8	PC	1.04
16	0.85	0.8	PC	1.19
17	0.85	0.9	PC	1.04
18	0.85	0.9	PC	1.19
19	0.65	0.7	PSC	1.04
20	0.65	0.7	PSC	1.19
21	0.65	0.8	PSC	1.04
22	0.65	0.8	PSC	1.19
23	0.65	0.9	PSC	1.04
24	0.65	0.9	PSC	1.19
25	0.75	0.7	PSC	1.04
26	0.75	0.7	PSC	1.19
27	0.75	0.8	PSC	1.04
28	0.75	0.8	PSC	1.19
29	0.75	0.9	PSC	1.04
30	0.75	0.9	PSC	1.19
31	0.85	0.7	PSC	1.04
32	0.85	0.7	PSC	1.19
33	0.85	0.8	PSC	1.04
34	0.85	0.8	PSC	1.19
35	0.85	0.9	PSC	1.04
36	0.85	0.9	PSC	1.19

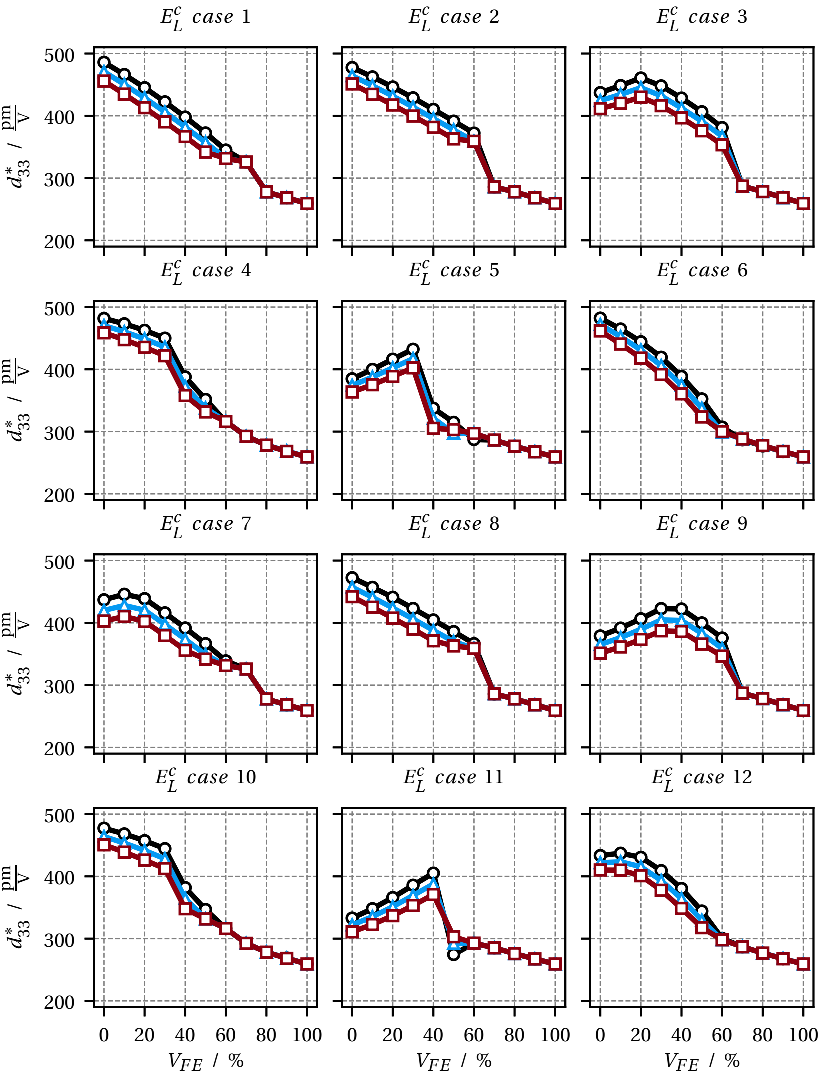


Abbildung E.1: Darstellung von d_{33}^* über V_{FE} für die Cases 1 - 12 der Variation von $E_{L,RE}^c/E_{RE}^c$ mit den Werten: 0.75 (schwarz), 0.85 (blau) und 0.95 (rot).

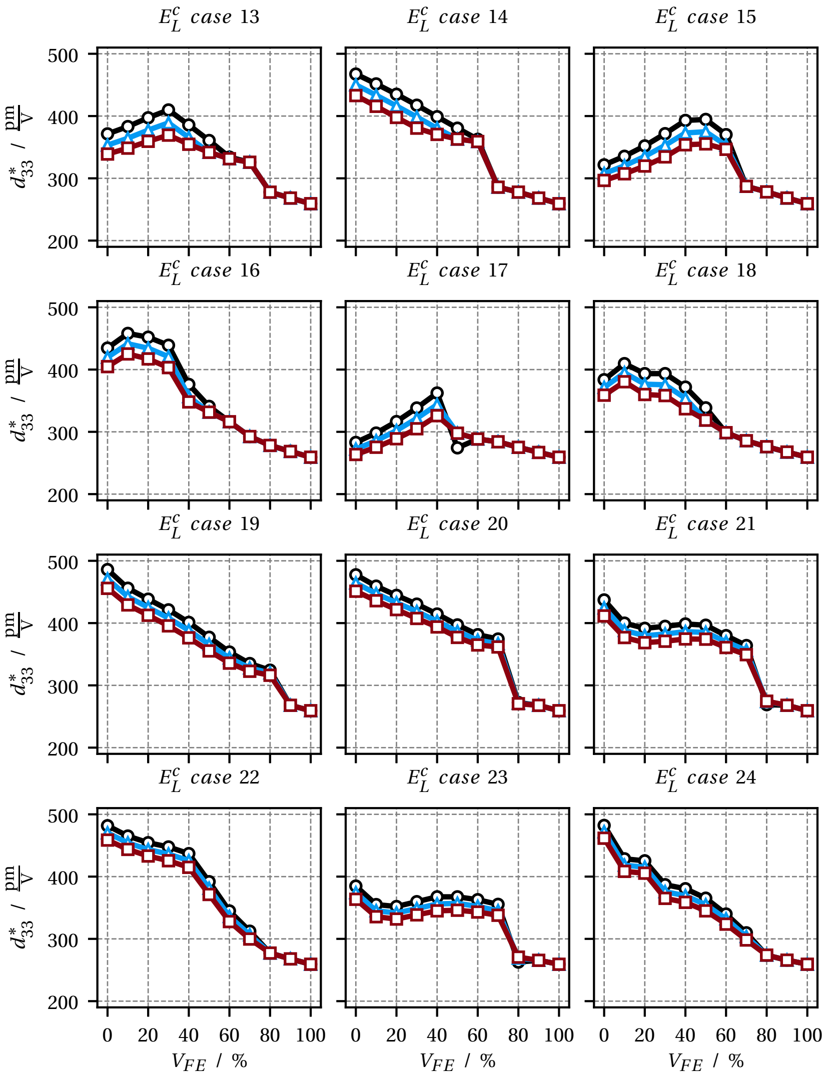


Abbildung E.2: Darstellung von d_{33}^* über V_{FE} für die Cases 13 - 24 der Variation von $E_{L,RE}^c/E_{RE}^c$ mit den Werten: 0.75 (schwarz), 0.85 (blau) und 0.95 (rot).

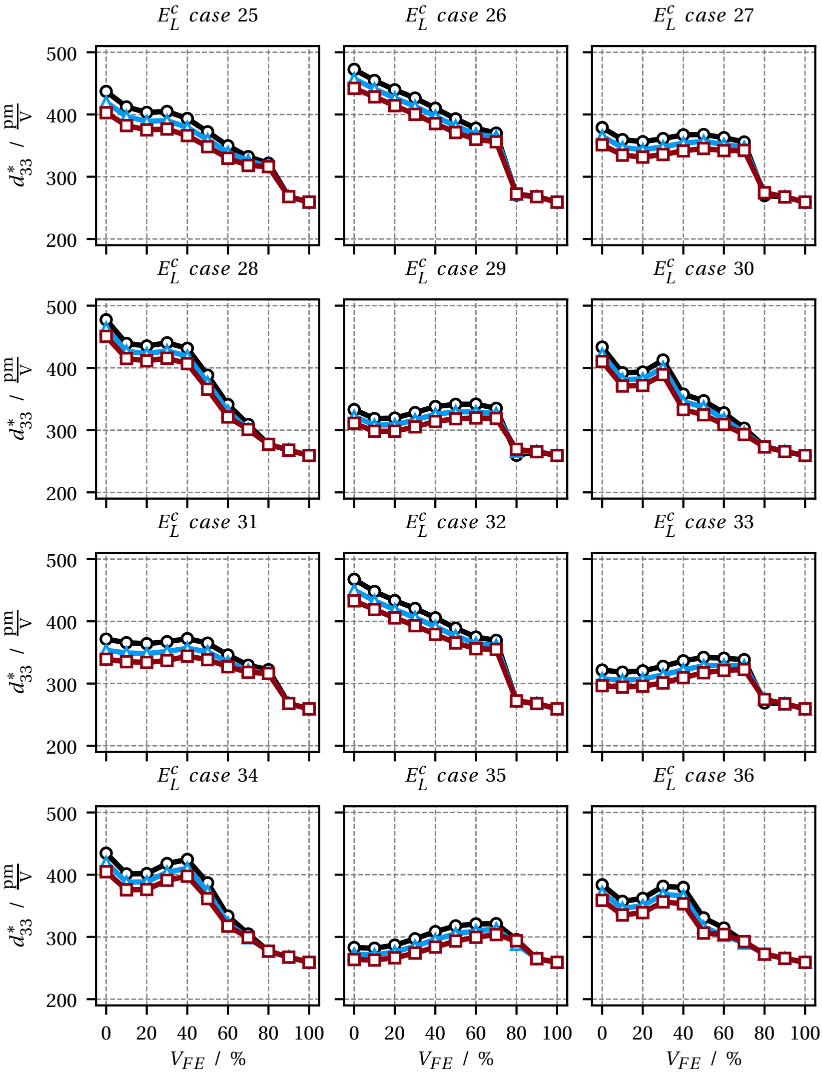


Abbildung E.3: Darstellung von d_{33}^* über V_{FE} für die Cases 25 - 36 der Variation von $E_{L,RE}^c/E_{RE}^c$ mit den Werten: 0.75 (schwarz), 0.85 (blau) und 0.95 (rot).

Tabelle E.2: Übersicht Cases E^c_{RE}/E^c_{FE}

E^c case	$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	Kopplung	$\frac{Emax}{E^{sat}_{FE}}$
1	0.75	0.7	*PC*	1.04
2	0.75	0.7	*PC*	1.19
3	0.75	0.8	*PC*	1.04
4	0.75	0.8	*PC*	1.19
5	0.75	0.9	*PC*	1.04
6	0.75	0.9	*PC*	1.19
7	0.85	0.7	*PC*	1.04
8	0.85	0.7	*PC*	1.19
9	0.85	0.8	*PC*	1.04
10	0.85	0.8	*PC*	1.19
11	0.85	0.9	*PC*	1.04
12	0.85	0.9	*PC*	1.19
13	0.95	0.7	*PC*	1.04
14	0.95	0.7	*PC*	1.19
15	0.95	0.8	*PC*	1.04
16	0.95	0.8	*PC*	1.19
17	0.95	0.9	*PC*	1.04
18	0.95	0.9	*PC*	1.19
19	0.75	0.7	*PSC*	1.04
20	0.75	0.7	*PSC*	1.19
21	0.75	0.8	*PSC*	1.04
22	0.75	0.8	*PSC*	1.19
23	0.75	0.9	*PSC*	1.04
24	0.75	0.9	*PSC*	1.19
25	0.85	0.7	*PSC*	1.04
26	0.85	0.7	*PSC*	1.19
27	0.85	0.8	*PSC*	1.04
28	0.85	0.8	*PSC*	1.19
29	0.85	0.9	*PSC*	1.04
30	0.85	0.9	*PSC*	1.19
31	0.95	0.7	*PSC*	1.04
32	0.95	0.7	*PSC*	1.19
33	0.95	0.8	*PSC*	1.04
34	0.95	0.8	*PSC*	1.19
35	0.95	0.9	*PSC*	1.04
36	0.95	0.9	*PSC*	1.19

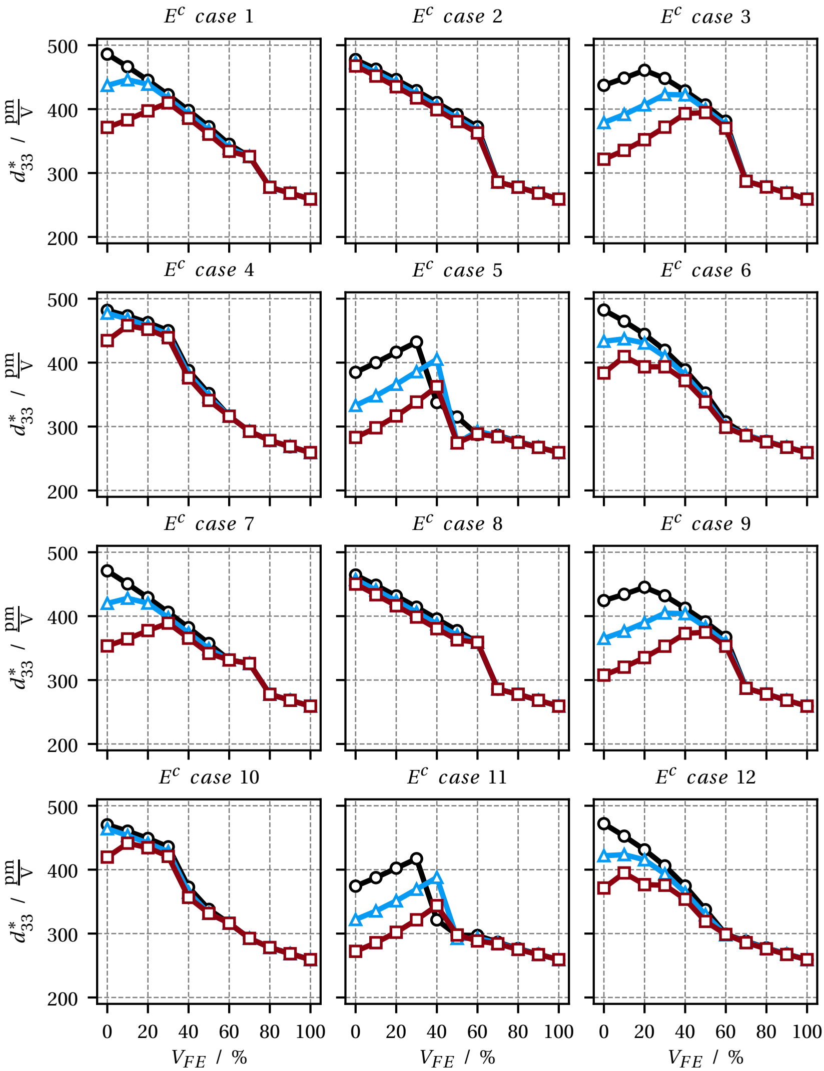


Abbildung E.4: Darstellung von d^*_{33} über V_{FE} für die Cases 1 - 12 der Variation von E^c_{RE}/E^c_{FE} mit den Werten: 0.65 (schwarz), 0.75 (blau) und 0.85 (rot).

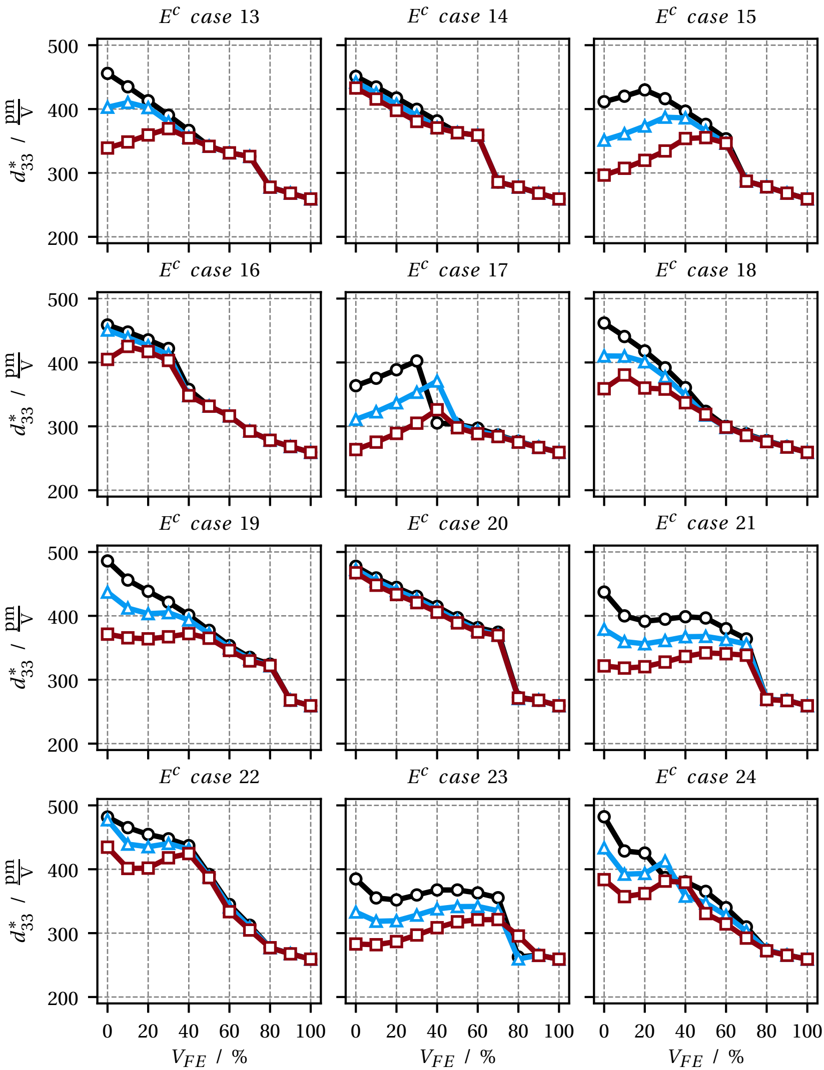


Abbildung E.5: Darstellung von d^*_{33} über V_{FE} für die Cases 13 - 24 der Variation von E^c_{RE}/E^c_{FE} mit den Werten: 0.65 (schwarz), 0.75 (blau) und 0.85 (rot).

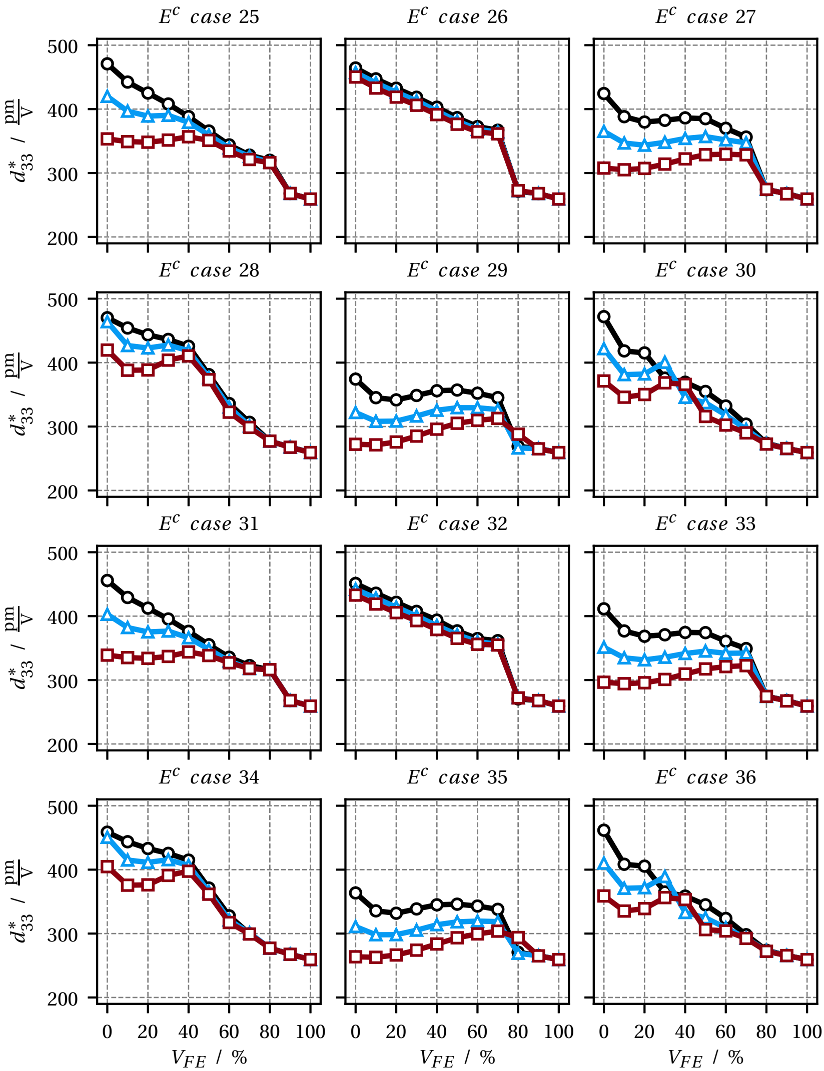


Abbildung E.6: Darstellung von d^*_{33} über V_{FE} für die Cases 25 - 36 der Variation von E^c_{RE}/E^c_{FE} mit den Werten: 0.65 (schwarz), 0.75 (blau) und 0.85 (rot).

Tabelle E.3: Übersicht Cases $P^{sat}_{RE}/P^{sat}_{FE}$

P^{sat} case	$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	Kopplung	$\frac{E_{max}}{E^{sat}_{FE}}$
1	0.75	0.65	*PC*	1.04
2	0.75	0.65	*PC*	1.19
3	0.75	0.75	*PC*	1.04
4	0.75	0.75	*PC*	1.19
5	0.75	0.85	*PC*	1.04
6	0.75	0.85	*PC*	1.19
7	0.75	0.65	*PSC*	1.04
8	0.75	0.65	*PSC*	1.19
9	0.75	0.75	*PSC*	1.04
10	0.75	0.75	*PSC*	1.19
11	0.75	0.85	*PSC*	1.04
12	0.75	0.85	*PSC*	1.19
13	0.85	0.65	*PC*	1.04
14	0.85	0.65	*PC*	1.19
15	0.85	0.75	*PC*	1.04
16	0.85	0.75	*PC*	1.19
17	0.85	0.85	*PC*	1.04
18	0.85	0.85	*PC*	1.19
19	0.85	0.65	*PSC*	1.04
20	0.85	0.65	*PSC*	1.19
21	0.85	0.75	*PSC*	1.04
22	0.85	0.75	*PSC*	1.19
23	0.85	0.85	*PSC*	1.04
24	0.85	0.85	*PSC*	1.19
25	0.95	0.65	*PC*	1.04
26	0.95	0.65	*PC*	1.19
27	0.95	0.75	*PC*	1.04
28	0.95	0.75	*PC*	1.19
29	0.95	0.85	*PC*	1.04
30	0.95	0.85	*PC*	1.19
31	0.95	0.65	*PSC*	1.04
32	0.95	0.65	*PSC*	1.19
33	0.95	0.75	*PSC*	1.04
34	0.95	0.75	*PSC*	1.19
35	0.95	0.85	*PSC*	1.04
36	0.95	0.85	*PSC*	1.19

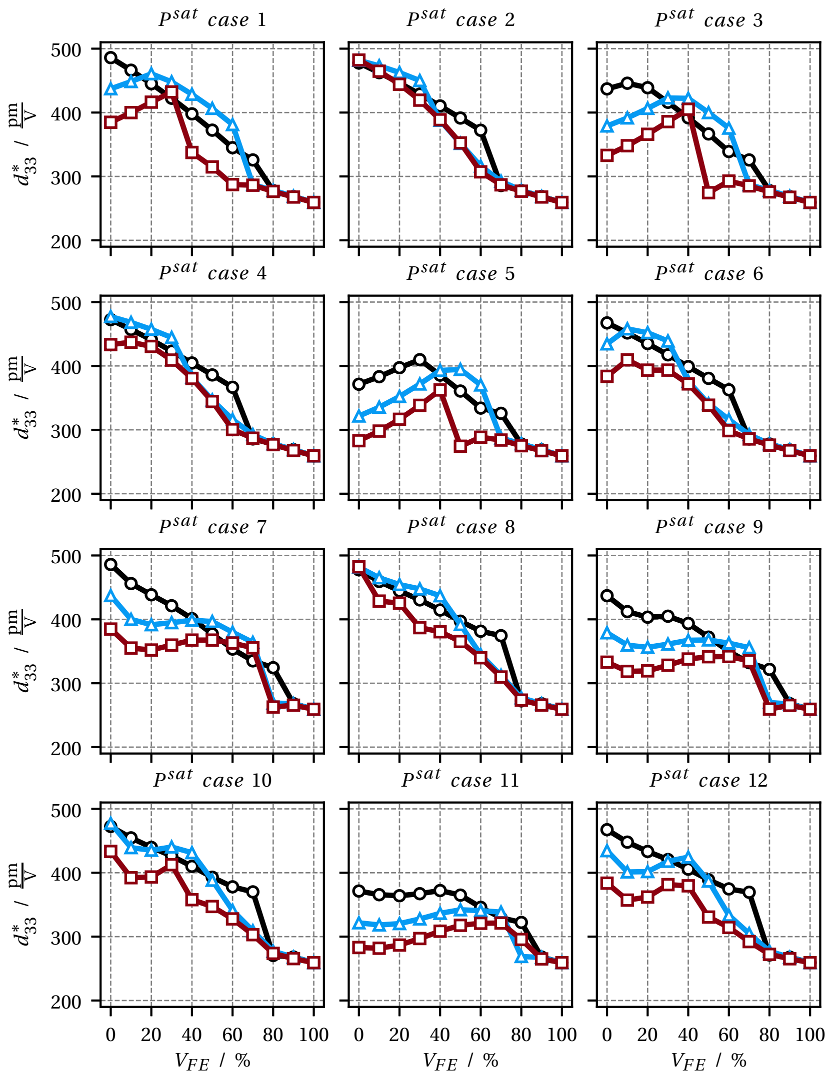


Abbildung E.7: Darstellung von d_{33}^{*} über V_{FE} für die Cases 1 - 12 der Variation von $P_{RE}^{sat}/P_{FE}^{sat}$ mit den Werten: 0.70 (schwarz), 0.80 (blau) und 0.90 (rot).

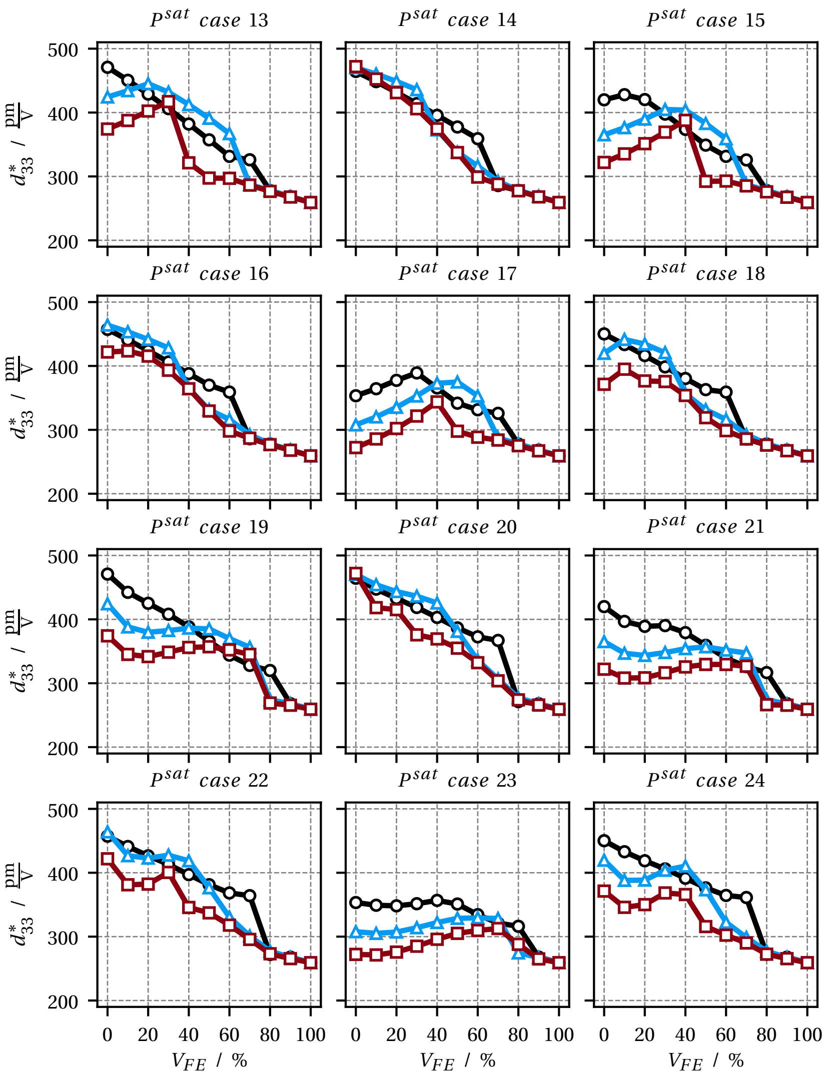


Abbildung E.8: Darstellung von d^*_{33} über V_{FE} für die Cases 13 - 24 der Variation von $P^{sat}_{RE}/P^{sat}_{FE}$ mit den Werten: 0.70 (schwarz), 0.80 (blau) und 0.90 (rot).

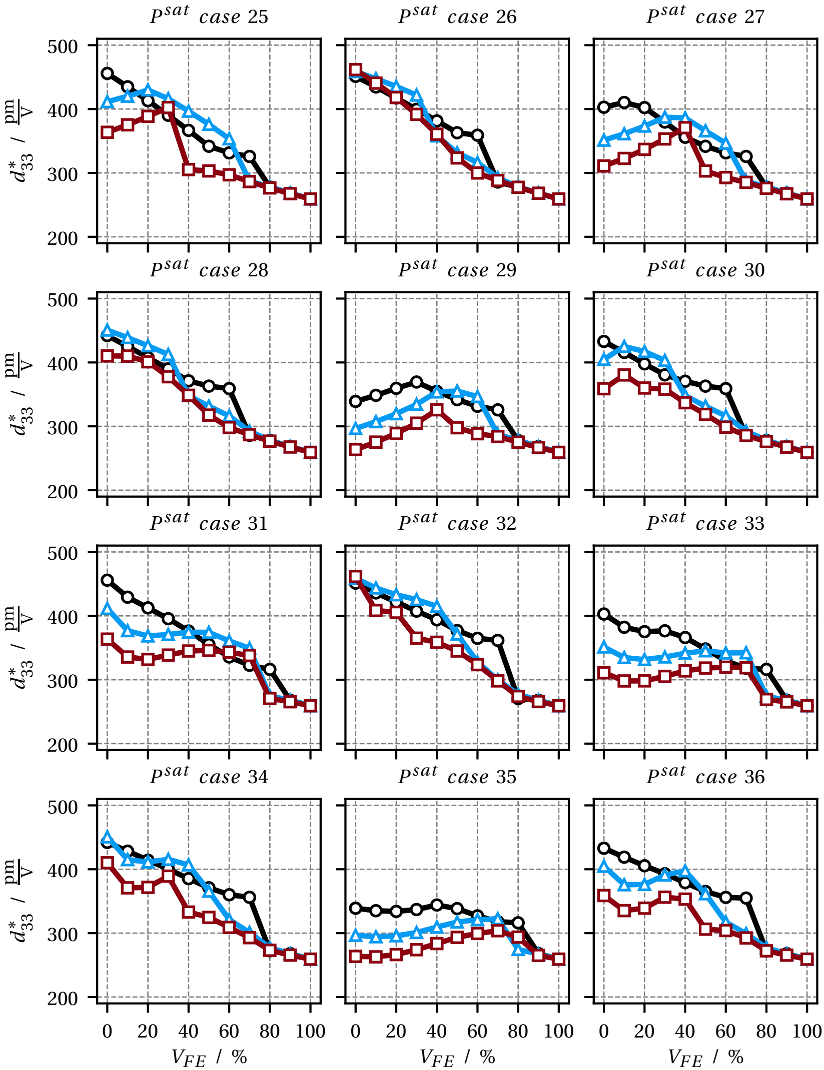


Abbildung E.9: Darstellung von d_{33}^{*} über V_{FE} für die Cases 25 - 36 der Variation von $P_{RE}^{sat}/P_{FE}^{sat}$ mit den Werten: 0.70 (schwarz), 0.80 (blau) und 0.90 (rot).

Tabelle E.4: Übersicht Cases Kopplung, Teil 1

coupling case	$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	$\frac{Emax}{E^{sat}_{FE}}$
1	0.75	0.65	0.7	1.04
2	0.75	0.65	0.7	1.19
3	0.75	0.65	0.8	1.04
4	0.75	0.65	0.8	1.19
5	0.75	0.65	0.9	1.04
6	0.75	0.65	0.9	1.19
7	0.85	0.65	0.7	1.04
8	0.85	0.65	0.7	1.19
9	0.85	0.65	0.8	1.04
10	0.85	0.65	0.8	1.19
11	0.85	0.65	0.9	1.04
12	0.85	0.65	0.9	1.19
13	0.95	0.65	0.7	1.04
14	0.95	0.65	0.7	1.19
15	0.95	0.65	0.8	1.04
16	0.95	0.65	0.8	1.19
17	0.95	0.65	0.9	1.04
18	0.95	0.65	0.9	1.19
19	0.75	0.75	0.7	1.04
20	0.75	0.75	0.7	1.19
21	0.75	0.75	0.8	1.04
22	0.75	0.75	0.8	1.19
23	0.75	0.75	0.9	1.04
24	0.75	0.75	0.9	1.19
25	0.85	0.75	0.7	1.04
26	0.85	0.75	0.7	1.19
27	0.85	0.75	0.8	1.04
28	0.85	0.75	0.8	1.19
29	0.85	0.75	0.9	1.04
30	0.85	0.75	0.9	1.19
31	0.95	0.75	0.7	1.04
32	0.95	0.75	0.7	1.19
33	0.95	0.75	0.8	1.04
34	0.95	0.75	0.8	1.19
35	0.95	0.75	0.9	1.04
36	0.95	0.75	0.9	1.19
37	0.75	0.85	0.7	1.04
38	0.75	0.85	0.7	1.19
39	0.75	0.85	0.8	1.04
40	0.75	0.85	0.8	1.19

Tabelle E.5: Übersicht Cases Kopplung, Teil 2

coupling case	$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	$\frac{E_{max}}{E^{sat}_{FE}}$
41	0.75	0.85	0.9	1.04
42	0.75	0.85	0.9	1.19
43	0.85	0.85	0.7	1.04
44	0.85	0.85	0.7	1.19
45	0.85	0.85	0.8	1.04
46	0.85	0.85	0.8	1.19
47	0.85	0.85	0.9	1.04
48	0.85	0.85	0.9	1.19
49	0.95	0.85	0.7	1.04
50	0.95	0.85	0.7	1.19
51	0.95	0.85	0.8	1.04
52	0.95	0.85	0.8	1.19
53	0.95	0.85	0.9	1.04
54	0.95	0.85	0.9	1.19

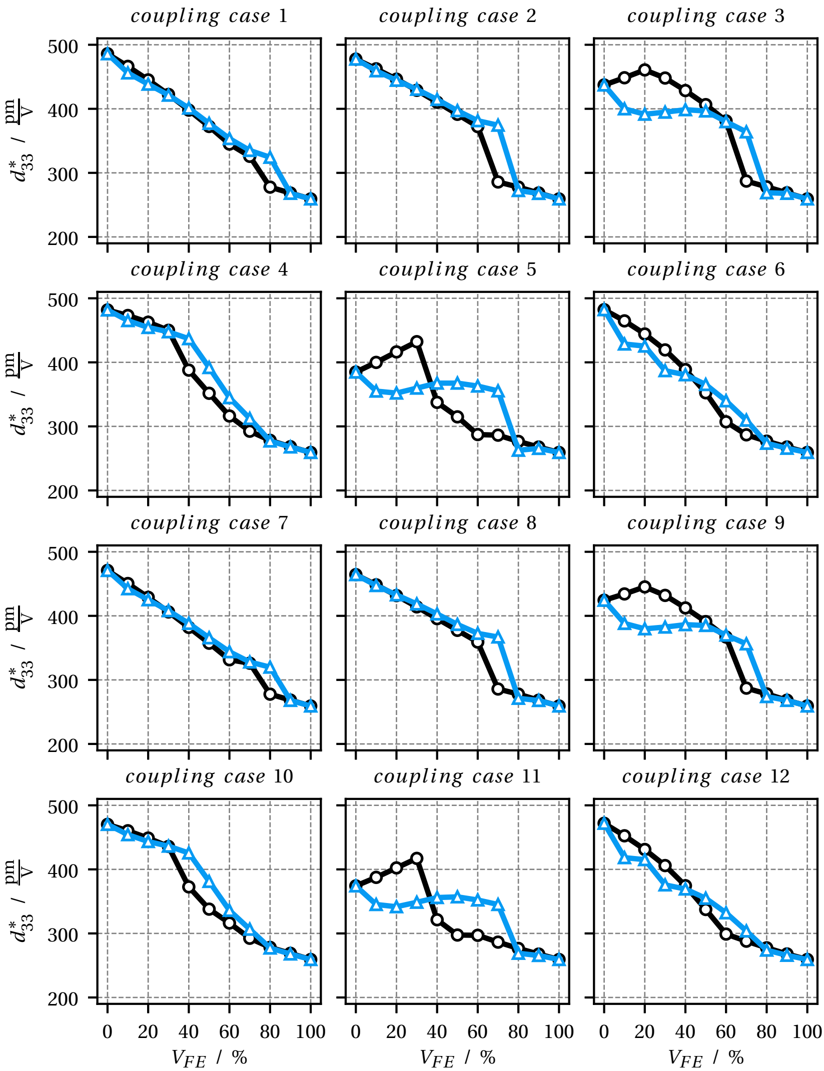


Abbildung E.10: Darstellung von d_{33}^* über V_{FE} für die Cases 1 - 12 der Variation der Kopplungsart: PC (schwarz) und PSC (blau).

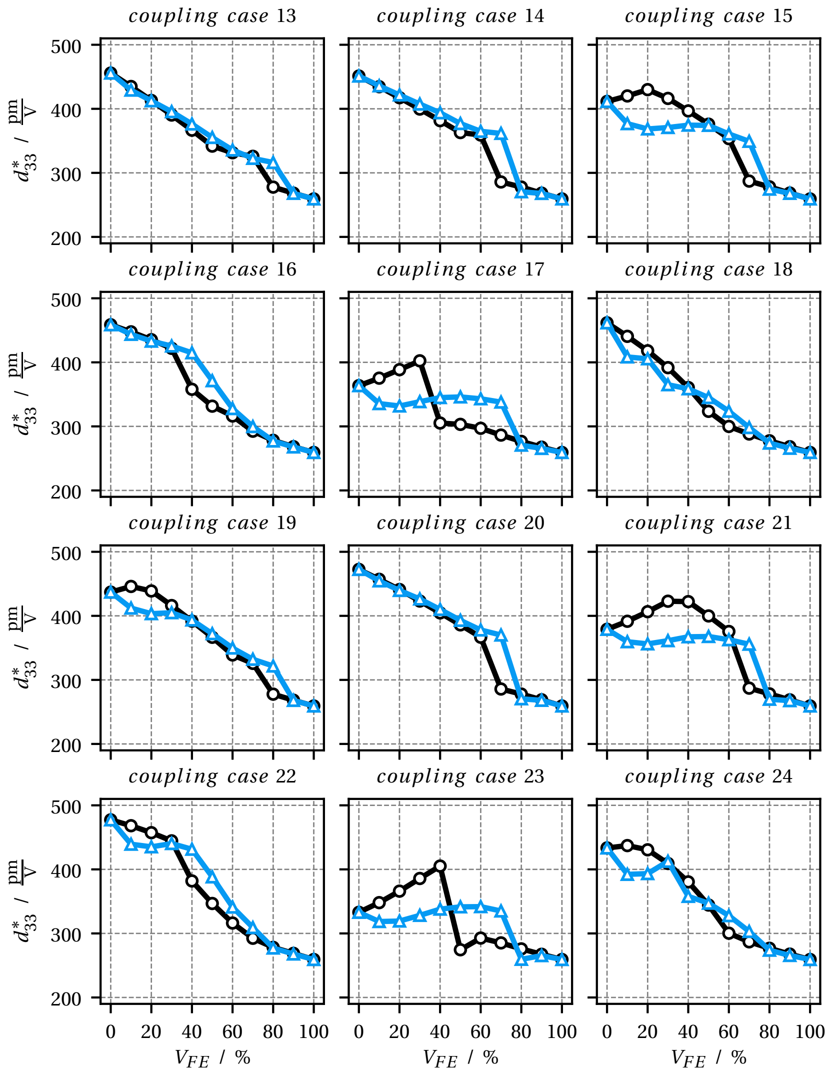


Abbildung E.11: Darstellung von d_{33}^* über V_{FE} für die Cases 13 - 24 der Variation der Kopplungsart: PC (schwarz) und PSC (blau).

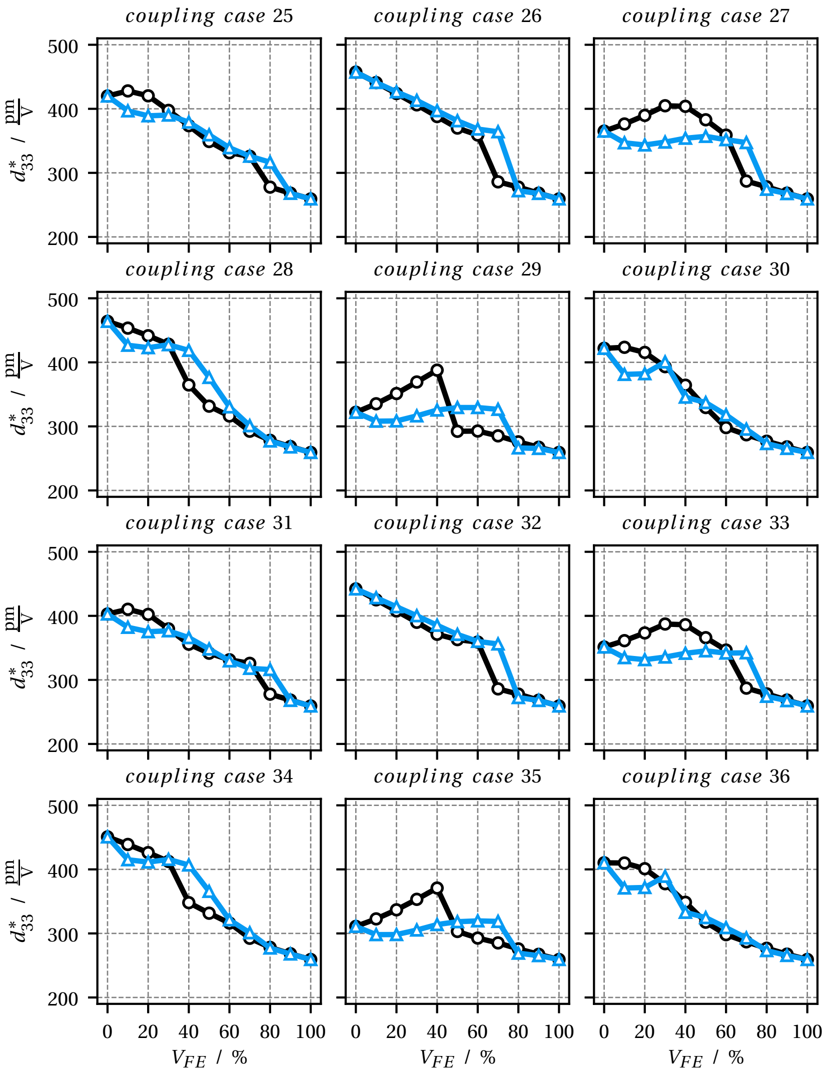


Abbildung E.12: Darstellung von d_{33}^* über V_{FE} für die Cases 25 - 36 der Variation der Kopplungsart: PC (schwarz) und PSC (blau).

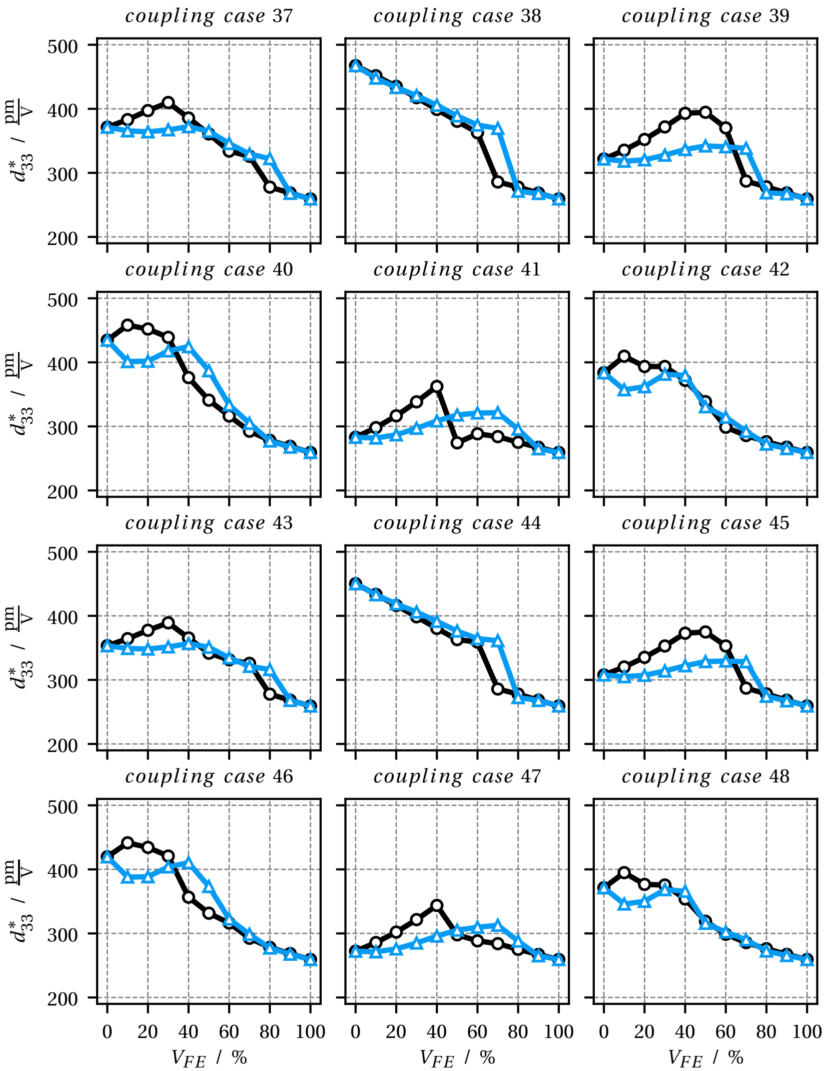


Abbildung E.13: Darstellung von d_{33}^* über V_{FE} für die Cases 37 - 48 der Variation der Kopplungsart: PC (schwarz) und PSC (blau).

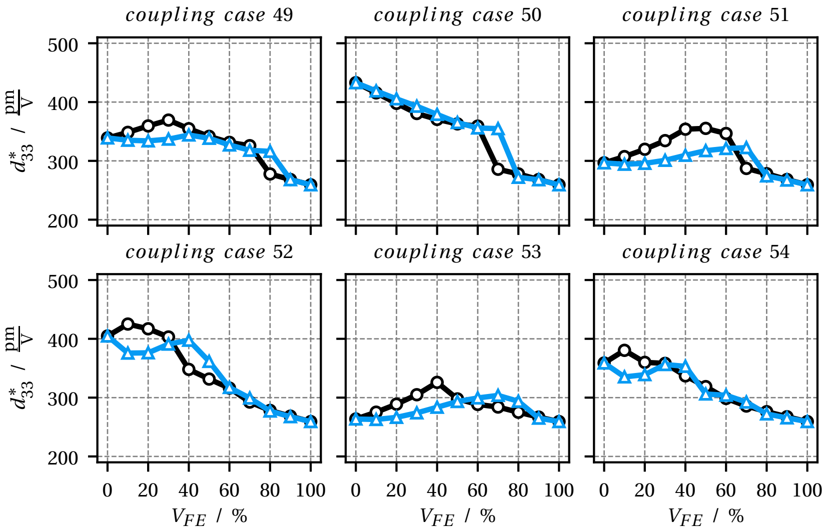


Abbildung E.14: Darstellung von d_{33}^* über V_{FE} für die Cases 49 - 54 der Variation der Kopplungsart: PC (schwarz) und PSC (blau).

Tabelle E.6: Übersicht Cases E_{max}/E_{FE}^{sat}, Teil 1

E_{max} case	$\frac{E_{L,RE}^{c}}{E_{RE}^{c}}$	$\frac{E_{RE}^{c}}{E_{FE}^{c}}$	$\frac{P_{RE}^{sat}}{P_{FE}^{sat}}$	Kopplung
1	0.75	0.65	0.7	*PC*
2	0.75	0.75	0.7	*PC*
3	0.75	0.85	0.7	*PC*
4	0.75	0.65	0.7	*PSC*
5	0.75	0.75	0.7	*PSC*
6	0.75	0.85	0.7	*PSC*
7	0.75	0.65	0.8	*PC*
8	0.75	0.75	0.8	*PC*
9	0.75	0.85	0.8	*PC*
10	0.75	0.65	0.8	*PSC*
11	0.75	0.75	0.8	*PSC*
12	0.75	0.85	0.8	*PSC*
13	0.75	0.65	0.9	*PC*
14	0.75	0.75	0.9	*PC*
15	0.75	0.85	0.9	*PC*
16	0.75	0.65	0.9	*PSC*
17	0.75	0.75	0.9	*PSC*
18	0.75	0.85	0.9	*PSC*
19	0.85	0.65	0.7	*PC*
20	0.85	0.75	0.7	*PC*
21	0.85	0.85	0.7	*PC*
22	0.85	0.65	0.7	*PSC*
23	0.85	0.75	0.7	*PSC*
24	0.85	0.85	0.7	*PSC*
25	0.85	0.65	0.8	*PC*
26	0.85	0.75	0.8	*PC*
27	0.85	0.85	0.8	*PC*
28	0.85	0.65	0.8	*PSC*
29	0.85	0.75	0.8	*PSC*
30	0.85	0.85	0.8	*PSC*
31	0.85	0.65	0.9	*PC*
32	0.85	0.75	0.9	*PC*
33	0.85	0.85	0.9	*PC*
34	0.85	0.65	0.9	*PSC*
35	0.85	0.75	0.9	*PSC*
36	0.85	0.85	0.9	*PSC*
37	0.95	0.65	0.7	*PC*
38	0.95	0.75	0.7	*PC*
39	0.95	0.85	0.7	*PC*
40	0.95	0.65	0.7	*PSC*

Tabelle E.7: Übersicht Cases E_{max}/E_{FE}^{sat}, Teil 2

E_{max} case	$\frac{E_{L,RE}^{c}}{E_{RE}^{c}}$	$\frac{E_{RE}^{c}}{E_{FE}^{c}}$	$\frac{P_{RE}^{sat}}{P_{FE}^{sat}}$	Kopplung
41	0.95	0.75	0.7	*PSC*
42	0.95	0.85	0.7	*PSC*
43	0.95	0.65	0.8	*PC*
44	0.95	0.75	0.8	*PC*
45	0.95	0.85	0.8	*PC*
46	0.95	0.65	0.8	*PSC*
47	0.95	0.75	0.8	*PSC*
48	0.95	0.85	0.8	*PSC*
49	0.95	0.65	0.9	*PC*
50	0.95	0.75	0.9	*PC*
51	0.95	0.85	0.9	*PC*
52	0.95	0.65	0.9	*PSC*
53	0.95	0.75	0.9	*PSC*
54	0.95	0.85	0.9	*PSC*

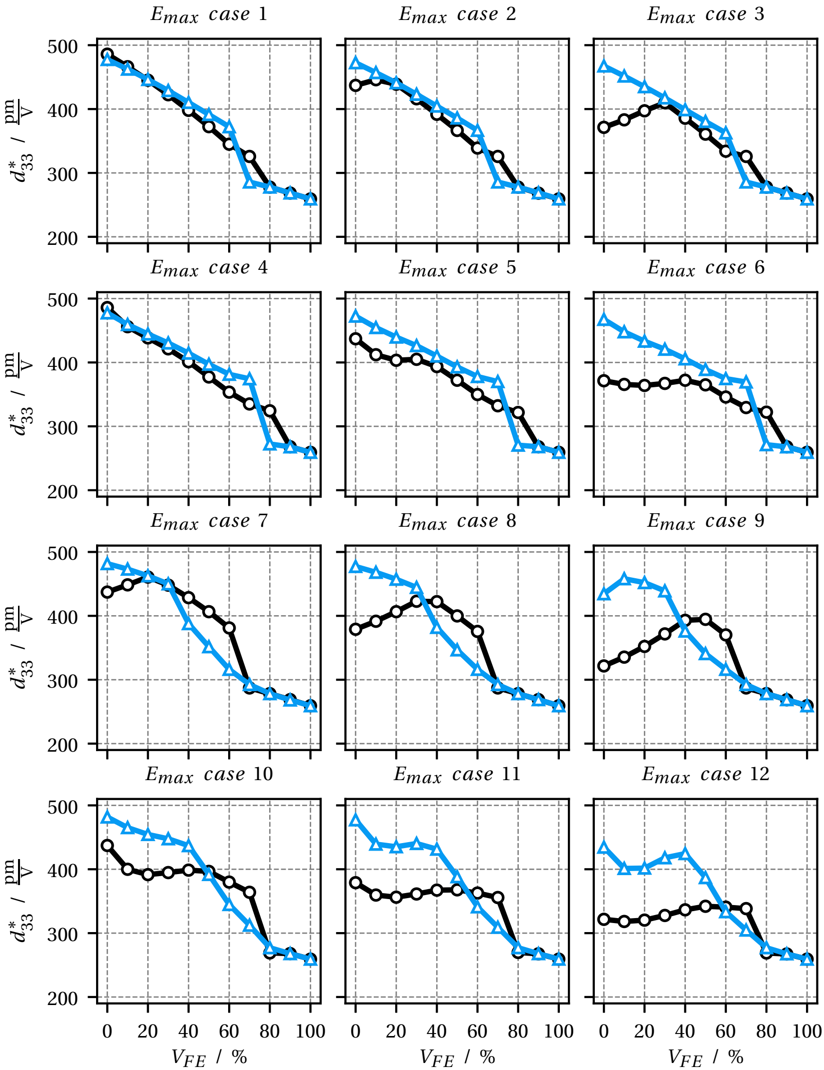


Abbildung E.15: Darstellung von d_{33}^* über V_{FE} für die Cases 1 - 12 der Variation des maximalen elektrischen Belastungsfaktors E_{max}/E_{FE}^{sat}: 1.04 (schwarz) und 1.19 (blau).

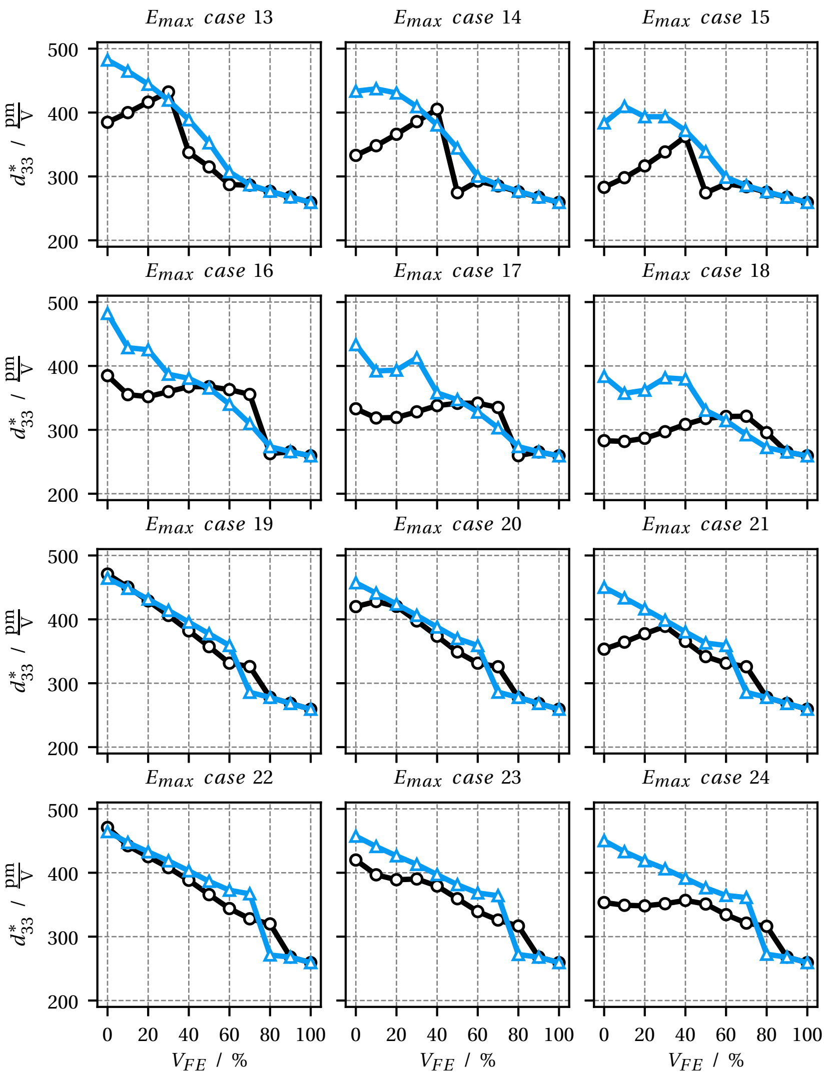


Abbildung E.16: Darstellung von d_{33}^* über V_{FE} für die Cases 13 - 24 der Variation des maximalen elektrischen Belastungsfaktors E_{max}/E_{FE}^{sat}: 1.04 (schwarz) und 1.19 (blau).

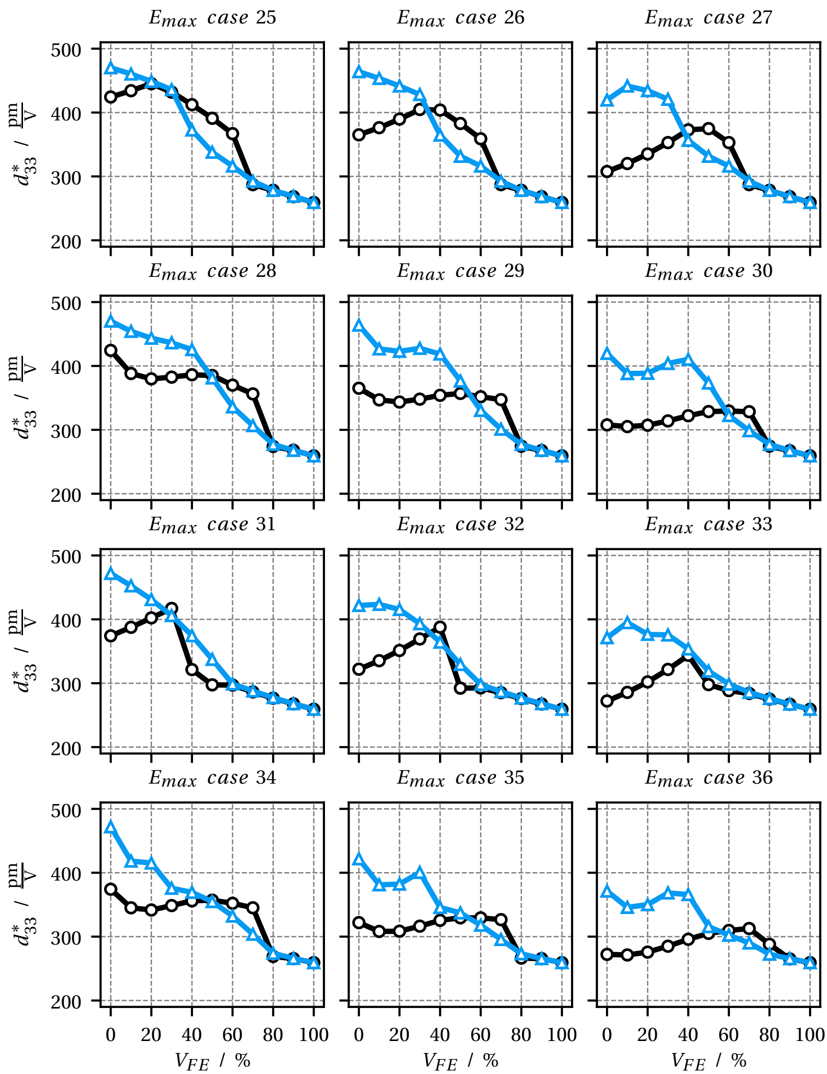


Abbildung E.17: Darstellung von d_{33}^{*} über V_{FE} für die Cases 25 - 36 der Variation des maximalen elektrischen Belastungsfaktors E_{max}/E_{FE}^{sat}: 1.04 (schwarz) und 1.19 (blau).

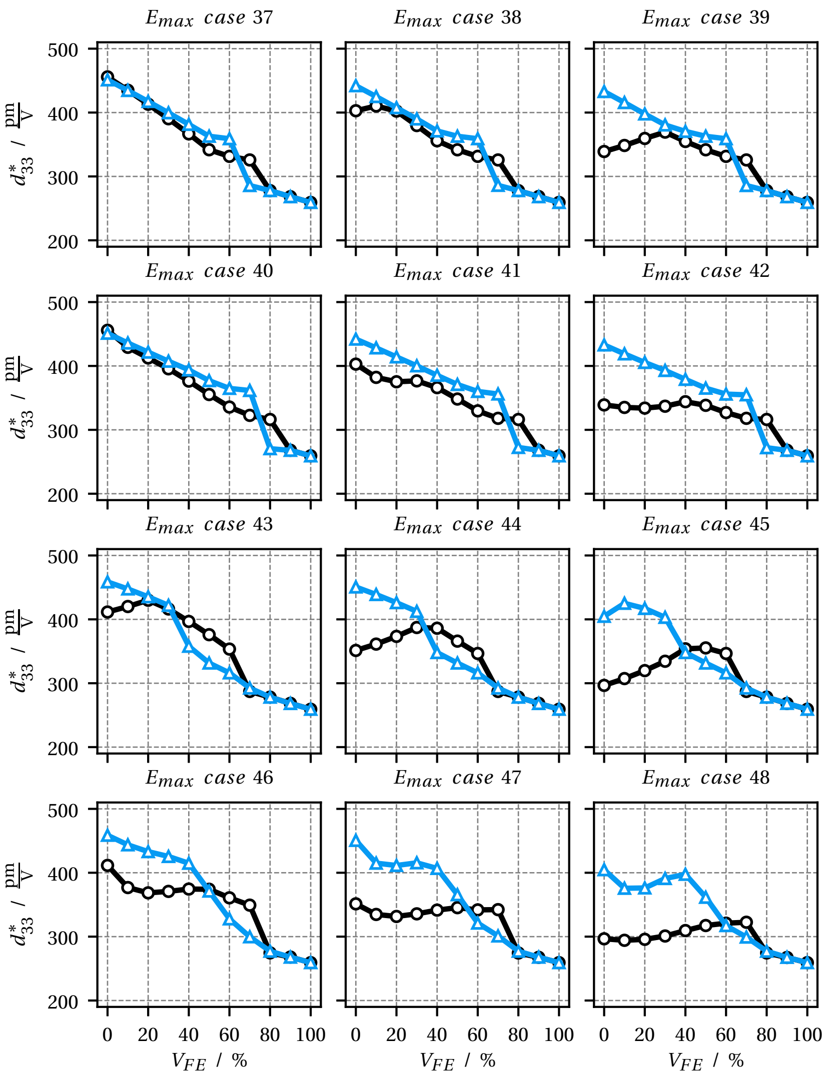


Abbildung E.18: Darstellung von d_{33}^{*} über V_{FE} für die Cases 37 - 48 der Variation des maximalen elektrischen Belastungsfaktors E_{max}/E_{FE}^{sat}: 1.04 (schwarz) und 1.19 (blau).

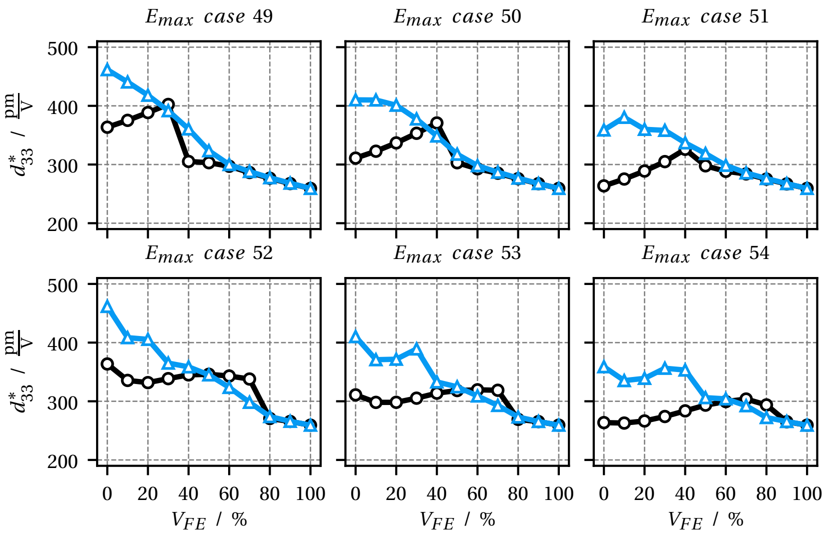


Abbildung E.19: Darstellung von d_{33}^* über V_{FE} für die Cases 49 - 54 der Variation des maximalen elektrischen Belastungsfaktors E_{max}/E_{FE}^{sat}: 1.04 (schwarz) und 1.19 (blau).

Tabelle E.8: Relative $d^*_{33,max}/d^*_{33,RE}$ Überhöhung, Teil 1

no.	$\frac{d^*_{33,max}}{d^*_{33,RE}}$	$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	coupling	$\frac{Emax}{E^{sat}_{FE}}$
1	1.281	0.75	0.85	0.9	*PC*	1.04
2	1.263	0.85	0.85	0.9	*PC*	1.04
3	1.236	0.95	0.85	0.9	*PC*	1.04
4	1.227	0.75	0.85	0.8	*PC*	1.04
5	1.218	0.85	0.85	0.8	*PC*	1.04
6	1.217	0.75	0.75	0.9	*PC*	1.04
7	1.204	0.85	0.75	0.9	*PC*	1.04
8	1.198	0.95	0.85	0.8	*PC*	1.04
9	1.193	0.95	0.75	0.9	*PC*	1.04
10	1.152	0.95	0.85	0.9	*PSC*	1.04
11	1.149	0.85	0.85	0.9	*PSC*	1.04
12	1.135	0.75	0.85	0.9	*PSC*	1.04
13	1.123	0.75	0.65	0.9	*PC*	1.04
14	1.116	0.75	0.75	0.8	*PC*	1.04
15	1.115	0.85	0.65	0.9	*PC*	1.04
16	1.109	0.85	0.75	0.8	*PC*	1.04
17	1.107	0.95	0.65	0.9	*PC*	1.04
18	1.104	0.75	0.85	0.7	*PC*	1.04
19	1.102	0.95	0.75	0.8	*PC*	1.04
20	1.101	0.85	0.85	0.7	*PC*	1.04
21	1.090	0.95	0.85	0.7	*PC*	1.04
22	1.087	0.95	0.85	0.8	*PSC*	1.04
23	1.071	0.85	0.85	0.8	*PSC*	1.04
24	1.067	0.75	0.85	0.9	*PC*	1.19
25	1.064	0.85	0.85	0.9	*PC*	1.19
26	1.064	0.75	0.85	0.8	*PSC*	1.04
27	1.060	0.95	0.85	0.9	*PC*	1.19
28	1.054	0.75	0.85	0.8	*PC*	1.19
29	1.054	0.75	0.65	0.8	*PC*	1.04
30	1.052	0.85	0.85	0.8	*PC*	1.19
31	1.050	0.95	0.85	0.8	*PC*	1.19
32	1.049	0.85	0.65	0.8	*PC*	1.04
33	1.045	0.95	0.65	0.8	*PC*	1.04
34	1.028	0.95	0.75	0.9	*PSC*	1.04
35	1.027	0.75	0.75	0.9	*PSC*	1.04
36	1.023	0.85	0.75	0.9	*PSC*	1.04
37	1.020	0.75	0.75	0.7	*PC*	1.04
38	1.019	0.85	0.75	0.7	*PC*	1.04
39	1.018	0.95	0.75	0.7	*PC*	1.04
40	1.015	0.95	0.85	0.7	*PSC*	1.04

Tabelle E.9: Relative $d^*_{33,max}/d^*_{33,RE}$ Überhöhung, Teil 2

no.	$\frac{d^*_{33,max}}{d^*_{33,RE}}$	$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	coupling	$\frac{E_{max}}{E^{sat}_{FE}}$
41	1.010	0.85	0.85	0.7	PSC	1.04
42	1.009	0.75	0.75	0.9	PC	1.19
43	1.004	0.85	0.75	0.9	PC	1.19
44	1.002	0.75	0.85	0.7	PSC	1.04
45	1.0	0.85	0.75	0.8	PSC	1.04
46	1.0	0.85	0.75	0.8	PSC	1.19
47	1.0	0.75	0.85	0.7	PSC	1.19
48	1.0	0.85	0.75	0.7	PSC	1.04
49	1.0	0.75	0.75	0.9	PSC	1.19
50	1.0	0.75	0.75	0.8	PSC	1.19
51	1.0	0.75	0.75	0.8	PSC	1.04
52	1.0	0.75	0.75	0.7	PSC	1.19
53	1.0	0.75	0.75	0.7	PSC	1.04
54	1.0	0.85	0.75	0.7	PSC	1.19
55	1.0	0.85	0.75	0.9	PSC	1.19
56	1.0	0.85	0.85	0.9	PSC	1.19
57	1.0	0.95	0.85	0.8	PSC	1.19
58	1.0	0.95	0.85	0.7	PSC	1.19
59	1.0	0.95	0.75	0.7	PSC	1.19
60	1.0	0.85	0.85	0.8	PSC	1.19
61	1.0	0.95	0.75	0.8	PSC	1.04
62	1.0	0.85	0.85	0.7	PSC	1.19
63	1.0	0.75	0.85	0.9	PSC	1.19
64	1.0	0.95	0.75	0.8	PSC	1.19
65	1.0	0.95	0.65	0.9	PSC	1.19
66	1.0	0.95	0.75	0.9	PSC	1.19
67	1.0	0.75	0.85	0.8	PSC	1.19
68	1.0	0.95	0.75	0.7	PSC	1.04
69	1.0	0.95	0.65	0.9	PSC	1.04
70	1.0	0.75	0.65	0.7	PC	1.04
71	1.0	0.95	0.65	0.8	PSC	1.04
72	1.0	0.85	0.75	0.8	PC	1.19
73	1.0	0.85	0.75	0.7	PC	1.19
74	1.0	0.75	0.75	0.8	PC	1.19
75	1.0	0.75	0.75	0.7	PC	1.19
76	1.0	0.95	0.65	0.9	PC	1.19
77	1.0	0.95	0.65	0.8	PC	1.19
78	1.0	0.95	0.65	0.7	PC	1.19
79	1.0	0.95	0.65	0.7	PC	1.04
80	1.0	0.85	0.65	0.9	PC	1.19

Tabelle E.10: Relative $d^*_{33,max}/d^*_{33,RE}$ Überhöhung, Teil 3

no.	$\frac{d^*_{33,max}}{d^*_{33,RE}}$	$\frac{E^c_{L,RE}}{E^c_{RE}}$	$\frac{E^c_{RE}}{E^c_{FE}}$	$\frac{P^{sat}_{RE}}{P^{sat}_{FE}}$	coupling	$\frac{E_{max}}{E^{sat}_{FE}}$
81	1.0	0.85	0.65	0.8	*PC*	1.19
82	1.0	0.85	0.65	0.7	*PC*	1.19
83	1.0	0.85	0.65	0.7	*PC*	1.04
84	1.0	0.75	0.65	0.9	*PC*	1.19
85	1.0	0.75	0.65	0.8	*PC*	1.19
86	1.0	0.75	0.65	0.7	*PC*	1.19
87	1.0	0.95	0.75	0.7	*PC*	1.19
88	1.0	0.95	0.75	0.8	*PC*	1.19
89	1.0	0.95	0.75	0.9	*PC*	1.19
90	1.0	0.75	0.85	0.7	*PC*	1.19
91	1.0	0.95	0.65	0.7	*PSC*	1.19
92	1.0	0.95	0.65	0.7	*PSC*	1.04
93	1.0	0.85	0.65	0.9	*PSC*	1.19
94	1.0	0.85	0.65	0.9	*PSC*	1.04
95	1.0	0.85	0.65	0.8	*PSC*	1.19
96	1.0	0.85	0.65	0.8	*PSC*	1.04
97	1.0	0.85	0.65	0.7	*PSC*	1.19
98	1.0	0.95	0.65	0.8	*PSC*	1.19
99	1.0	0.85	0.65	0.7	*PSC*	1.04
100	1.0	0.75	0.65	0.9	*PSC*	1.04
101	1.0	0.75	0.65	0.8	*PSC*	1.19
102	1.0	0.75	0.65	0.8	*PSC*	1.04
103	1.0	0.75	0.65	0.7	*PSC*	1.19
104	1.0	0.75	0.65	0.7	*PSC*	1.04
105	1.0	0.95	0.85	0.7	*PC*	1.19
106	1.0	0.85	0.85	0.7	*PC*	1.19
107	1.0	0.75	0.65	0.9	*PSC*	1.19
108	1.0	0.95	0.85	0.9	*PSC*	1.19

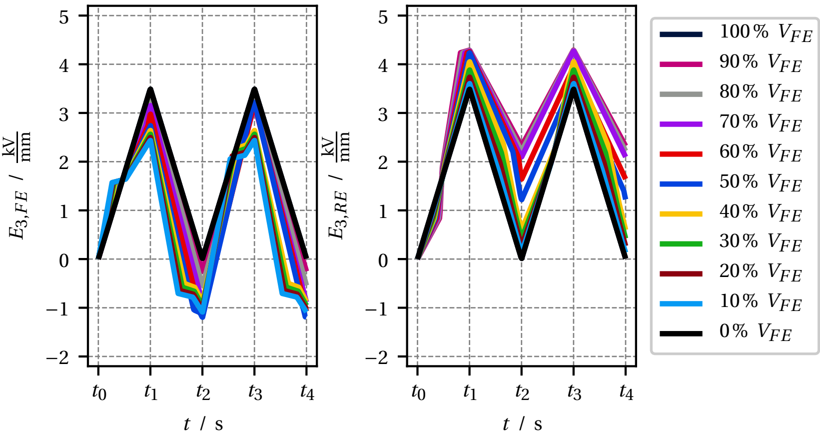


Abbildung E.20: Darstellung der zu Abb. 7.10 zugehörigen inneren elektrischen Felder über der Zeit des Ferroelektrikum (links) und des modifizierten Relaxors (rechts) für die Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.04$.

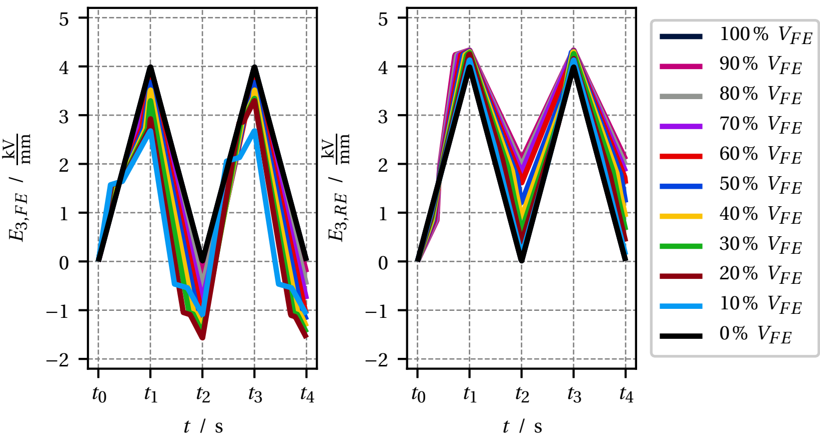


Abbildung E.21: Darstellung der zu Abb. 7.11 zugehörigen inneren elektrischen Felder über der Zeit des Ferroelektrikum (links) und des modifizierten Relaxors (rechts) für die Belastung $E_{max}/E_{FE}^{sat} = 1.19$.

Schriftenreihe des Instituts für Angewandte Materialien

ISSN 2192-9963

Band 1 Prachai Norajitra
Divertor Development for a Future Fusion Power Plant.
ISBN 978-3-86644-738-7

Band 2 Jürgen Prokop
Entwicklung von Spritzgießsonderverfahren zur Herstellung von Mikrobauteilen durch galvanische Replikation.
ISBN 978-3-86644-755-4

Band 3 Theo Fett
New contributions to R-curves and bridging stresses – Applications of weight functions.
ISBN 978-3-86644-836-0

Band 4 Jérôme Acker
Einfluss des Alkali/Niob-Verhältnisses und der Kupferdotierung auf das Sinterverhalten, die Strukturbildung und die Mikrostruktur von bleifreier Piezokeramik $(K_{0,5}Na_{0,5})NbO_3$.
ISBN 978-3-86644-867-4

Band 5 Holger Schwaab
Nichtlineare Modellierung von Ferroelektrika unter Berücksichtigung der elektrischen Leitfähigkeit.
ISBN 978-3-86644-869-8

Band 6 Christian Dethloff
Modeling of Helium Bubble Nucleation and Growth in Neutron Irradiated RAFM Steels.
ISBN 978-3-86644-901-5

Band 7 Jens Reiser
Duktilisierung von Wolfram. Synthese, Analyse und Charakterisierung von Wolframlaminaten aus Wolframfolie.
ISBN 978-3-86644-902-2

Band 8 Andreas Sedlmayr
Experimental Investigations of Deformation Pathways in Nanowires.
ISBN 978-3-86644-905-3

Band 9 Matthias Friedrich Funk
Microstructural stability of nanostructured fcc metals during cyclic deformation and fatigue.
ISBN 978-3-86644-918-3

Band 10 Maximilian Schwenk
Entwicklung und Validierung eines numerischen Simulationsmodells zur Beschreibung der induktiven Ein- und Zweifrequenzrandschichthärtung am Beispiel von vergütetem 42CrMo4.
ISBN 978-3-86644-929-9

Band 11 Matthias Merzkirch
Verformungs- und Schädigungsverhalten der verbundstranggepressten, federstahldrahtverstärkten Aluminiumlegierung EN AW-6082.
ISBN 978-3-86644-933-6

Band 12 Thilo Hammers
Wärmebehandlung und Recken von verbundstranggepressten Luftfahrtprofilen.
ISBN 978-3-86644-947-3

Band 13 Jochen Lohmiller
Investigation of deformation mechanisms in nanocrystalline metals and alloys by in situ synchrotron X-ray diffraction.
ISBN 978-3-86644-962-6

Band 14 Simone Schreijäg
Microstructure and Mechanical Behavior of Deep Drawing DC04 Steel at Different Length Scales.
ISBN 978-3-86644-967-1

Band 15 Zhiming Chen
Modelling the plastic deformation of iron.
ISBN 978-3-86644-968-8

Band 16 Abdullah Fatih Çetinel
Oberflächendefektausheilung und Festigkeitssteigerung von niederdruckspritzgegossenen Mikrobiegebalken aus Zirkoniumdioxid.
ISBN 978-3-86644-976-3

Band 17 Thomas Weber
Entwicklung und Optimierung von gradierten Wolfram/EUROFER97-Verbindungen für Divertorkomponenten.
ISBN 978-3-86644-993-0

Die Bände sind unter www.ksp.kit.edu als PDF frei verfügbar oder als Druckausgabe bestellbar.

Band 18 Melanie Senn
Optimale Prozessführung mit merkmalsbasierter Zustandsverfolgung.
ISBN 978-3-7315-0004-9

Band 19 Christian Mennerich
Phase-field modeling of multi-domain evolution in ferromagnetic shape memory alloys and of polycrystalline thin film growth.
ISBN 978-3-7315-0009-4

Band 20 Spyridon Korres
On-Line Topographic Measurements of Lubricated Metallic Sliding Surfaces.
ISBN 978-3-7315-0017-9

Band 21 Abhik Narayan Choudhury
Quantitative phase-field model for phase transformations in multi-component alloys.
ISBN 978-3-7315-0020-9

Band 22 Oliver Ulrich
Isothermes und thermisch-mechanisches Ermüdungsverhalten von Verbundwerkstoffen mit Durchdringungsgefüge (Preform-MMCs).
ISBN 978-3-7315-0024-7

Band 23 Sofie Burger
High Cycle Fatigue of Al and Cu Thin Films by a Novel High-Throughput Method.
ISBN 978-3-7315-0025-4

Band 24 Michael Teutsch
Entwicklung von elektrochemisch abgeschiedenem LIGA-Ni-Al für Hochtemperatur-MEMS-Anwendungen.
ISBN 978-3-7315-0026-1

Band 25 Wolfgang Rheinheimer
Zur Grenzflächenanisotropie von $SrTiO_3$.
ISBN 978-3-7315-0027-8

Band 26 Ying Chen
Deformation Behavior of Thin Metallic Wires under Tensile and Torsional Loadings.
ISBN 978-3-7315-0049-0

Band 27 Sascha Haller
Gestaltfindung: Untersuchungen zur Kraftkegelmethode.
ISBN 978-3-7315-0050-6

Band 28 Nicht erschienen

Band 29 Gunnar Picht
Einfluss der Korngröße auf ferroelektrische Eigenschaften dotierter $Pb(Zr_{1-x}Ti_x)O_3$ Materialien.
ISBN 978-3-7315-0106-0

Band 30 Esther Held
Eigenspannungsanalyse an Schichtverbunden mittels inkrementeller Bohrlochmethode.
ISBN 978-3-7315-0127-5

Band 31 Pei He
On the structure-property correlation and the evolution of Nanofeatures in 12-13.5% Cr oxide dispersion strengthened ferritic steels.
ISBN 978-3-7315-0141-1

Band 32 Jan Hoffmann
Ferritische ODS-Stähle – Herstellung, Umformung und Strukturanalyse.
ISBN 978-3-7315-0157-2

Band 33 Wiebke Sittel
Entwicklung und Optimierung des Diffusionsschweißens von ODS Legierungen.
ISBN 978-3-7315-0182-4

Band 34 Osama Khalil
Isothermes Kurzzeitermüdungsverhalten der hoch-warmfesten Aluminium-Knetlegierung 2618A (AlCu2Mg1,5Ni).
ISBN 978-3-7315-0208-1

Band 35 Nicht erschienen

Band 36 Christoph Hage
Grundlegende Aspekte des 2K-Metallpulverspritzgießens.
ISBN 978-3-7315-0217-3

Band 37 Bartłomiej Albiński
Instrumentierte Eindringprüfung bei Hochtemperatur für die Charakterisierung bestrahlter Materialien.
ISBN 978-3-7315-0221-0

Band 38 Tim Feser
Untersuchungen zum Einlaufverhalten binärer alpha-Messinglegierungen unter Ölschmierung in Abhängigkeit des Zinkgehaltes.
ISBN 978-3-7315-0224-1

Band 39 Jörg Ettrich
Fluid Flow and Heat Transfer in Cellular Solids.
ISBN 978-3-7315-0241-8

Band 40 Melanie Syha
Microstructure evolution in strontium titanate Investigated by means of grain growth simulations and x-ray diffraction contrast tomography experiments.
ISBN 978-3-7315-0242-5

Band 41 Thomas Haas
Mechanische Zuverlässigkeit von gedruckten und gasförmig abgeschiedenen Schichten auf flexiblem Substrat.
ISBN 978-3-7315-0250-0

Band 42 Aron Kneer
Numerische Untersuchung des Wärmeübertragungsverhaltens in unterschiedlichen porösen Medien.
ISBN 978-3-7315-0252-4

Band 43 Manuel Feuchter
Investigations on Joule heating applications by multiphysical continuum simulations in nanoscale systems.
ISBN 978-3-7315-0261-6

Band 44 Alexander Vondrous
Grain growth behavior and efficient large scale simulations of recrystallization with the phase-field method.
ISBN 978-3-7315-0280-7

Band 45 Tobias Kennerknecht
Fatigue of Micro Molded Materials – Aluminum Bronze and Yttria Stabilized Zirconia.
ISBN 978-3-7315-0293-7

Band 46 Christopher Scherr
Elektrochemisches Verhalten von Lithium-Schwefel-Zellen mit unterschiedlicher Kathodenstruktur.
ISBN 978-3-7315-0296-8

Band 47 Konstantin Frölich
Der Decal-Prozess zur Herstellung katalysatorbeschichteter Membranen für PEM-Brennstoffzellen.
ISBN 978-3-7315-0334-7

Band 48 Benedikt Haspel
Werkstoffanalytische Betrachtung der Eigenschaften von mittels neuartiger RTM-Fertigungsprozesse hergestellten glasfaserverstärkten Polymerverbunden.
ISBN 978-3-7315-0337-8

Band 49 Marco Berghoff
Skalenübergreifende Modellierung und Optimierung vom atomistischen kristallinen Phasenfeldmodell bis zur mesoskopischen Phasenfeldmethode.
ISBN 978-3-7315-0416-0

Band 50 Michael Selzer
Mechanische und Strömungsmechanische Topologieoptimierung mit der Phasenfeldmethode.
ISBN 978-3-7315-0431-3

Band 51 Michael Mahler
Entwicklung einer Auswertemethode für bruchmechanische Versuche an kleinen Proben auf der Basis eines Kohäsivzonenmodells.
ISBN 978-3-7315-0441-2

Band 52 Christoph Bohnert
Numerische Untersuchung des Verformungs- und Bruchverhaltens von einkristallinem Wolfram auf mikroskopischer Ebene.
ISBN 978-3-7315-0444-3

Band 53 Stefan Guth
Schädigung und Lebensdauer von Nickelbasislegierungen unter thermisch-mechanischer Ermüdungsbeanspruchung bei verschiedenen Phasenlagen.
ISBN 978-3-7315-0445-0

Band 54 Markus Klinsmann
The Effects of Internal Stress and Lithium Transport on Fracture in Storage Materials in Lithium-Ion Batteries.
ISBN 978-3-7315-0455-9

Band 55 Thomas Straub
Experimental Investigation of Crack Initiation in Face-Centered Cubic Materials in the High and Very High Cycle Fatigue Regime.
ISBN 978-3-7315-0471-9

Band 56 Maren Lepple
Kupfer- und Eisenoxide als Konversions-Elektrodenmaterialien für Lithium-Ionen-Batterien: Thermodynamische und Elektrochemische Untersuchungen.
ISBN 978-3-7315-0482-5

Band 57 Stefan Andreas Slaby
Charakterisierung und Bewertung der Zug- und Ermüdungseigenschaften von Mikrobauteilen aus 17-4PH Edelstahl. Ein Vergleich von mikropulverspritzgegossenem und konventionell hergestelltem Material.
ISBN 978-3-7315-0484-9

Band 58 Kumar Ankit
Phase-field modeling of microstructural pattern formation in alloys and geological veins.
ISBN 978-3-7315-0491-7

Band 59 Kuo Zhang
Characterization and Modeling of the Ratcheting Behavior of the Ferritic-Martensitic Steel P91.
ISBN 978-3-7315-0503-7

Band 60 Nicht erschienen

Band 61 Fabian Lemke
Untersuchung des Sinterverhaltens von $SrTiO_3$ unter Berücksichtigung der Defektchemie.
ISBN 978-3-7315-0510-5

Band 62 Johannes Kümmel
Detaillierte Analyse der Aufbauschneidenbildung bei der Trockenzerspanung von Stahl C45E mit Berücksichtigung des Werkzeugverschleißes.
ISBN 978-3-7315-0518-1

Band 63 László Hagymási
Modellierung der Stoffübertragung beim Niederdruckcarbonitrieren mit Ammoniak und Acetylen.
ISBN 978-3-7315-0568-6

Band 64 Reza Eslami
A novel micro-mechanical model for prediction of multiaxial high cycle fatigue at small scales.
ISBN 978-3-7315-0583-9

Band 65 Sebastian Schulz
Phase-field simulations of multi-component solidification and coarsening based on thermodynamic datasets.
ISBN 978-3-7315-0618-8

Band 66 Markus Stricker
Die Übertragung von mikrostrukturellen Eigenschaften aus der diskreten Versetzungsdynamik in Kontinuumsbeschreibungen.
ISBN 978-3-7315-0658-4

Band 67 Luis Straßberger
Untersuchung und Modellierung des viskoplastischen Verformungsverhaltens oxidpartikelverstärkter Stähle.
ISBN 978-3-7315-0674-4

Band 68 Mark Wobrock
Microplasticity of idealized single crystalline Ag cantilevers characterized with methods of high resolution.
ISBN 978-3-7315-0682-9

Band 69 Amritesh Kumar
Micromechanical study on the deformation behaviour of directionally solidified NiAl-Cr eutectic composites.
ISBN 978-3-7315-0694-2

Band 70 Johannes Hötzer
Massiv-parallele und großskalige Phasenfeldsimulationen zur Untersuchung der Mikrostrukturentwicklung.
ISBN 978-3-7315-0693-5

Band 71 Thomas Hupfer
Herstellung von LATP für den Einsatz als Festkörperelektrolyt und dessen Eigenschaften.
ISBN 978-3-7315-0702-4

Band 72 Florentin Pottmeyer
Schädigungsverhalten von in CFK-Laminaten eingebetteten Inserts unter bauteilnahen Beanspruchungen.
ISBN 978-3-7315-0719-2

Band 73 Andres Höweling
Untersuchung der Hochvoltstabilität und Tiefentladung von dotierten $LiNi_{0,5}Mn_{1,5}O_4$-Hochvoltspinellen.
ISBN 978-3-7315-0728-4

Band 74 Tabea Gisela Schwark
Deformation and Fracture Properties of the Soft Magnetic Composite Somaloy 700 3P on Different Length Scales.
ISBN 978-3-7315-0759-8

Band 75 Klaudia Lichtenberg
Metallmatrixverbunde mit Verstärkungselementen aus metallischem Glas $Ni_{60}Nb_{20}Ta_{20}$ – Herstellung und Charakterisierung.
ISBN 978-3-7315-0782-6

Band 76 Claudio Findeisen
Charakterisierung und Modellierung von instabilen Metamaterialien.
ISBN 978-3-7315-0869-4

Band 77 Nilesha Mishra
Influence of strain on the functionality of ink-jet printed thin films and devices on flexible substrates.
ISBN 978-3-7315-0853-3

Band 78 Simon Werner Bonk
Plastische Verformungsmechanismen in hochgradig kaltgewalzten, ultrafeinkörnigen Wolframblechen.
ISBN 978-3-7315-0878-6

Band 79 Tim Gräning
Herstellung, Charakterisierung und Optimierung von austenitischen ODS Stählen.
ISBN 978-3-7315-0732-1

Band 80 Peter Rupp
Herstellung, Prüfung und Modellierung neuartiger hybrider Aluminiumschaum-CFK-Sandwichverbunde.
ISBN 978-3-7315-0880-9

Band 81 Benjamin Sebastian Ehreiser
Einfluss mechanischer Lasten auf die Herstellung von Stahl-Glaskeramik-Verbunden.
ISBN 978-3-7315-0954-7

Band 82 Hans Giel
Weiterentwicklung experimenteller Methoden zur Ermittlung thermodynamischer Werkstoffdaten von Lithium-Ionen-Batterien.
ISBN 978-3-7315-0981-3

Band 83 Anna Trauth
Characterisation and Modelling of Continuous-Discontinuous Sheet Moulding Compound Composites for Structural Applications.
ISBN 978-3-7315-0950-9

Band 84 Jonas Johannes Hüther
The Impact of Recycling on the Fibre and the Composite Properties of Carbon Fibre Reinforced Plastics.
ISBN 978-3-7315-0983-7

Band 85 Nicolas A. Mayer
Thermodynamik von Kobaltoxid Anodenmaterialien für Lithium-Ionen-Batterien und ihr elektrochemisches Verhalten.
ISBN 978-3-7315-0996-7

Band 86 Ulrich Führer
Untersuchung und Modellierung des Haltezeiteinflusses auf die zyklische Entfestigung ferritisch-martensitischer Stähle.
ISBN 978-3-7315-0837-3

Band 87 Ebru Cihan
Structure evolution in tribological interfaces studied by multilayer model alloys.
ISBN 978-3-7315-0999-8

Band 88 Markus Sudmanns
Entwicklung einer Kontinuumsbeschreibung für die Versetzungsmobilität in Versetzungsnetzwerken.
ISBN 978-3-7315-1001-7

Band 89 Tao Zhang
Phase-field Modeling of Phase Changes and Mechanical Stresses in Electrode Particles of Secondary Batteries.
ISBN 978-3-7315-1002-4

Band 90 Markus Ganser
On the Electro-Chemo-Mechanical Coupling in Solid State Batteries and its Impact on Morphological Interface Stability.
ISBN 978-3-7315-1047-5

Band 91 Michael Kellner
Modellierung mehrkomponentiger Materialsysteme für die Phasenfeldmethode und Analyse der simulierten Mikrostrukturen.
ISBN 978-3-7315-1044-4

Band 92 Felix Schröckert
Herstellung dünner Folien aus Lithium-Lanthan-Titanat zur Anwendung als Festkörperelektrolyt.
ISBN 978-3-7315-1008-6

Band 93 Ephraim Schoof
Chemomechanische Modellierung der Wärmebehandlung von Stählen mit der Phasenfeldmethode.
ISBN 978-3-7315-1050-5

Band 94 Alexander Valentin Brabänder
Registrierende Härtemessung an neutronenbestrahlten Materialien bei hohen Temperaturen.
ISBN 978-3-7315-1097-0

Band 95 Denny Schmidt
Einfluss der Kompaktierung auf die Elektrodenmikrostruktur und elektrochemische Performance bei Lithium-Ionen-Zellen.
ISBN 978-3-7315-1098-7

Band 96 Svenja Dittrich
Entwicklung von Siebdruckpasten zur Herstellung von Glaslotfügungen für die Festoxidbrennstoffzelle.
ISBN 978-3-7315-1085-7

Band 97 Michael Dippon
Bestimmung der Betriebsgrenzen für das Schnellladen von Lithium-Ionen Batterien.
ISBN 978-3-7315-1123-6

Band 98 Patricia Haremski
Diffusionseigenschaften von Nickel in einer Festoxid-Brennstoffzelle.
ISBN 978-3-7315-1124-3

Band 99 Florian Wankmüller
Mehrskalige Charakterisierung der Hochtemperatur-Brennstoffzelle (SOFC).
ISBN 978-3-7315-1142-7

Band 100 Niklas Russner
Modellgestützte Analyse des Stackbetriebs von Festoxidzellen.
ISBN 978-3-7315-1144-1

Band 101 Theo Fett, Karl G. Schell, Ethel C. Bucharsky, Gabriele Rizzi, Pascal Hettich, Susanne Wagner, Michael J. Hoffmann
Consequences of hydroxyl generation by the silica/water reaction - Part I: Diffusion and Swelling.
ISBN 978-3-7315-1148-9

Band 102 Theo Fett, Karl G. Schell, Ethel C. Bucharsky, Gabriele Rizzi, Susanne Wagner, Michael J. Hoffmann
Consequences of hydroxyl generation by the silica/water reaction - Part II: Global and local Swelling Part III: Damage and Young's Modulus.
ISBN 978-3-7315-1159-5

Band 103 Johannes Dornheim
Modellfreies Lernen optimaler zeitdiskreter Regelungsstrategien für Fertigungsprozesse mit endlichem Zeithorizont.
ISBN 978-3-7315-1158-8

Band 104 Markus Muth
Grundlagenuntersuchungen an intrinsisch gefertigten lasttragenden FVK/Metall-Hybridträgern.
ISBN 978-3-7315-1161-8

Band 105 Oleg Birkholz
Modeling transport properties and electrochemical performance of hierarchically structured lithium-ion battery cathodes using resistor networks and mathematical half-cell models.
ISBN 978-3-7315-1172-4

Band 106 Verena Irene Becker
Modellierung der Mechanik und der effektiven Transporteigenschaften von partikulären Kathoden sowie deren Einfluss auf die elektrochemische Performance von Lithium-Ionen-Batterien.
ISBN 978-3-7315-1174-8

Band 107 Nikolai Zimber
Nanoskalige Analytik der Mikrostruktur von hochdosig bestrahltem Beryllium.
ISBN 978-3-7315-1178-6

Band 108 Francesco Mazzocchi
Development of NbN based Kinetic Inductance Detectors on sapphire and diamond substrates for fusion plasma polarimetric diagnostics.
ISBN 978-3-7315-1181-6

Band 109 Adrian Schmidt
Multiskalige Modellierung von Lithium-Ionen-Batterien.
ISBN 978-3-7315-1227-1

Band 110 Maximilian Röhe
Dynamic Model-based Analysis of Oxygen Reduction Reaction in Gas Diffusion Electrodes.
ISBN 978-3-7315-1234-9

Band 111 Michael Späth
Phasenfeldmodellierung von Bruchbildungs-, Kristallisations- und Auflösungsvorgängen in hydrothermalen Umgebungen.
ISBN 978-3-7315-1242-4

Band 112 Friedemann Streich
Numerische Modellierung und Simulation von bleifreien Relaxor-Ferroelektrikum-Kompositen.
ISBN 978-3-7315-1259-2

KARLSRUHER INSTITUT FÜR TECHNOLOGIE (KIT)
SCHRIFTENREIHE DES INSTITUTS FÜR ANGEWANDTE MATERIALIEN

Um bleifreie Alternativen zum aktuell dominierenden piezoelektrischen Material Blei-Zirkonat-Titanat zu ermöglichen, wird das elektromechanische Verhalten zweier neu entwickelten, auf Natrium-Bismut-Titanat (NBT) basierenden Ferroelektrika sowie daraus bestehenden Zweilagenkompositen durch Experimente und numerische Simulationen untersucht. Für die Finite-Elemente-Methode wird hierzu ein dreidimensionales, vollständig elektromechanisch gekoppeltes Materialmodell entwickelt, welches das ferroelektrische Verhalten der bleifreien Materialien hinreichend genau beschreiben kann. An Hand einer Parameterstudie werden die elektromechanischen Kopplungseigenschaften der Zweilagenkomposite optimiert.

ISBN 978-3-7315-1259-2

ISSN 2192-9963
ISBN 978-3-7315-1259-2

Gedruckt auf FSC-zertifiziertem Papier